

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2005年9月22日 (22.09.2005)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2005/088751 A1

(51) 国際特許分類<sup>7</sup>: H01M 8/04, 8/06

(21) 国際出願番号: PCT/JP2005/002697

(22) 国際出願日: 2005年2月21日 (21.02.2005)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願2004-068230 2004年3月10日 (10.03.2004) JP

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 日本電気株式会社 (NEC CORPORATION) [JP/JP]; 〒1088001 東京都港区芝五丁目7番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 佐々木 英明

(SASAKI, Hideaki) [JP/JP]; 〒1088001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 中村新 (NAKAMURA, Shin) [JP/JP]; 〒1088001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 関野省治 (SEKINO, Shouji) [JP/JP]; 〒1088001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP). 久保佳実 (KUBO, Yoshimi) [JP/JP]; 〒1088001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo (JP).

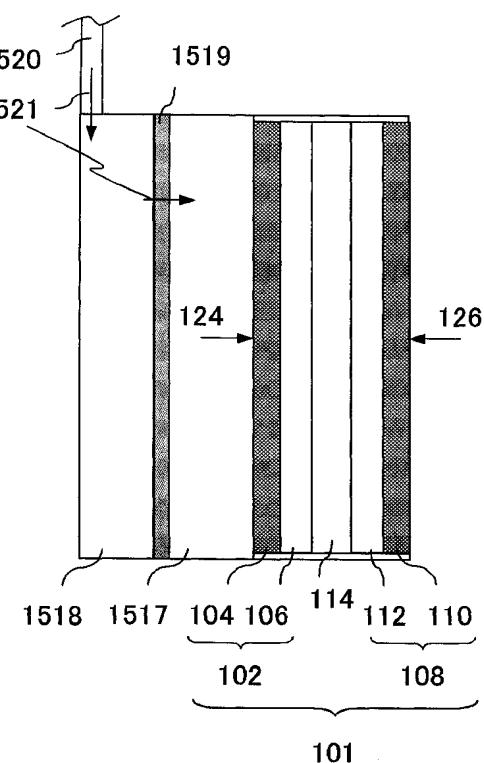
(74) 代理人: 宮崎 昭夫, 外 (MIYAZAKI, Teruo et al.); 〒1070052 東京都港区赤坂1丁目9番20号 第16興和ビル8階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS,

/ 続葉有 /

(54) Title: FUEL CONTAINER FOR FUEL CELL, FUEL CELL USING SAME, AND METHOD FOR OPERATING FUEL CELL

(54) 発明の名称: 燃料電池用燃料容器、それを用いた燃料電池、および燃料電池の運転方法



(57) Abstract: The present invention aims to provide a small-sized fuel cell wherein a fuel is stably supplied to a fuel electrode. Specifically, disclosed is a fuel cell (1516) comprising a liquid fuel container (1517) for holding a liquid fuel (124) to be supplied to a fuel electrode (102) and a vaporized fuel container (1518) communicating with the liquid fuel container (1517) via a gas-liquid separation membrane (1519).

(57) 要約: 本発明の目的は、燃料電池を小型化しつつ、燃料極への燃料の供給を安定的に行うことにある。本発明では、燃料電池1516において、燃料極102に供給する液体の燃料124を収容する液体燃料容器1517に気液分離膜1519を介して連通する気化燃料容器1518を設けることで上記目的を達成する。



LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU,

添付公開書類:  
— 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

## 明 細 書

## 燃料電池用燃料容器、それを用いた燃料電池、および燃料電池の運転方法

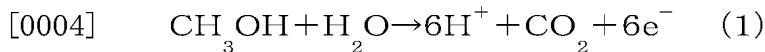
## 技術分野

[0001] 本発明は、燃料電池用燃料容器、それを用いた燃料電池、および燃料電池の運転方法に関する。

## 背景技術

[0002] 固体電解質型燃料電池は、燃料極および酸化剤極と、これらの間に設けられた固体電解質膜から構成され、燃料極には燃料が、酸化剤極には酸化剤が供給されて電気化学反応により発電する。燃料極および酸化剤極は、基材と、基材表面に備えられた触媒層とを含む。燃料としては、一般的には水素が用いられるが、近年、安価で取り扱いの容易なメタノールを原料として、メタノールを改質して水素を生成させるメタノール改質型や、メタノールを燃料として直接利用する直接型の燃料電池の開発も盛んに行われている。

[0003] 燃料としてメタノールを用いた場合、燃料極での反応は以下の式(1)のようになる。



また、酸化剤極での反応は以下の式(2)のようになる。



このように、直接型の燃料電池では、メタノール水溶液から水素イオンを得ることができるので、改質器などが不要になり、小型化及び軽量化を図ることができる。また、液体のメタノール水溶液を燃料とするため、エネルギー密度が非常に高いという特徴がある。

[0006] 特許文献1には、液体燃料を収容する液体燃料収容容器から外部の燃料電池に液体燃料を供給する技術が開示されている。特許文献1の燃料電池では、液体燃料収容容器に収容された液体燃料が導入管から本体に供給され、本体の気化部で気化された後、燃料極に導入される。

[0007] ところが、この燃料電池では、液体燃料収容容器中の液体燃料は、本体において

燃料極の手前に設けられた気化部で気化し、燃料極に導入される構成となっている。このため、燃料極に供給する燃料を所定の濃度に調節するという点で改善の余地があった。

[0008] 一方、特許文献2には、単電池セルに供給する液体燃料を貯蔵する燃料タンクに加え、高濃度メタノールタンクを有する燃料電池が開示されている。ところが、この場合、高濃度メタノールタンクに収容されている高濃度メタノールをポンプで燃料タンクに供給し、単電池セルに供給される液体燃料が所定の濃度になるように調整する必要があった。このため、装置構成が大型化、複雑化してしまっていた。

特許文献1:特開2001-93551号公報

特許文献2:特開2003-132924号公報

## 発明の開示

### 発明が解決しようとする課題

[0009] 本発明は上記事情に鑑みてなされたものであり、その目的は、燃料電池を小型化しつつ、燃料極への燃料の供給を安定的に行う技術を提供することにある。

### 課題を解決するための手段

[0010] 本発明によれば、固形または液体の燃料が配置される燃料電池用の容器であって、前記容器内に収容された前記燃料の蒸気を燃料電池の液体燃料供給系に補給する燃料ガス補給口を備えることを特徴とする燃料電池用燃料容器が提供される。

[0011] 本発明に係る燃料電池用燃料容器は、燃料ガス補給口を備える。燃料電池の燃料極への燃料の供給は、液体燃料供給系から行われる。このため、容器内に収容された燃料の蒸気を燃料電池の液体燃料供給系に溶解させて、燃料極に確実に補給することができる。液体燃料供給系に収容された液体燃料の燃料成分濃度が燃料電池の使用に伴い低下した際に、これを補給することができるため、液体燃料供給系の燃料濃度を安定化することができる。また、燃料の蒸気を液体燃料中に溶解させて補給するため、液体燃料供給系に燃料成分を補給するためのポンプ等の補器を用いることなく燃料を安定的に補給することができる。このため、本発明の燃料電池用燃料容器を用いることにより、簡素な構成で液体燃料供給型の燃料電池を安定的に運転することができる。

[0012] 本発明によれば、固形または液体の燃料が配置される燃料配置部と、前記燃料配置部に連通し、前記燃料を気化する気化部と、前記気化部で気化した気化燃料を燃料電池の液体燃料供給系に補給する燃料ガス補給口と、を有することを特徴とする燃料電池用燃料容器が提供される。

[0013] 本発明に係る燃料電池用燃料容器は、燃料配置部と気化部を有する。このため、燃料配置部に高濃度の液体または固形燃料を配置し、これを気化部で気化して液体燃料供給系に補給することができる。このため、簡素な構成で燃料電池の液体燃料供給系の燃料濃度の低下を好適に抑制することができる。

[0014] 本発明の燃料電池用燃料容器において、前記燃料ガス補給口に、気液分離部が設けられた構成とすることができる。こうすることにより、燃料電池の液体燃料供給系に、容器内で気化した燃料を選択的に補給することができる。本発明において、気液分離部がたとえば気液分離膜を有する構成とすることができる。

[0015] 本発明の燃料電池用燃料容器において、固形または液体の前記燃料が配置される燃料収容室と、前記燃料収容室で気化した前記燃料の蒸気を収容する気化室と、を備える構成とすることができる。燃料収容室と気化室を設けることにより、燃料容器内にさらに確実に固形または液体燃料を保持するとともに、これを気化して燃料電池の液体燃料供給系に安定的に補給することができる。

[0016] 本発明の燃料電池用燃料容器において、前記燃料収容室と前記気化室とが気液分離膜により区画されていてもよい。こうすれば、気化室内に気化燃料を選択的に配置することができる。このため、液体燃料供給系に気化燃料をさらに確実に補給することができる。

[0017] 本発明の燃料電池用燃料容器において、前記燃料は、有機液体燃料の固形化物であってもよい。こうすることにより、燃料成分を高濃度で含有する場合にも、容器外部への燃料成分の漏洩を抑制することができる。このため、燃料電池用燃料容器の使用時の安全性を向上させることができる。また、希薄な液体燃料を容器内に収容する場合に比べて燃料容器を小型化することができる。

[0018] 本発明の燃料電池用燃料容器は、前記燃料電池に着脱可能に設けられる燃料電池用燃料カートリッジであってもよい。本発明に係る燃料電池用燃料容器は小型で

制御性に優れた燃料補給が可能であるため、これを携帯可能な燃料電池用燃料カートリッジとすることにより、携帯型電気機器に適用される燃料電池等に好適に用いることができる。

[0019] 本発明によれば、燃料極と、前記燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給系と、前記液体燃料供給系に気化燃料を補給する気化燃料補給部と、を有し、前記液体燃料供給系と前記気化燃料補給部との間に、前記気化燃料を選択的に移動させる気液分離部が設けられたことを特徴とする燃料電池が提供される。

[0020] また、本発明によれば、燃料極と、前記燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給系と、前記燃料電池用燃料容器と、を備え、前記燃料電池用燃料容器と前記液体燃料供給系との間に、前記燃料の蒸気を前記液体燃料供給系に選択的に移動させる気液分離部が設けられたことを特徴とする燃料電池が提供される。

[0021] 本発明に係る燃料電池は、燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給系に気化燃料を補給する気化燃料補給部を有する。また、本発明に係る燃料電池は、上記燃料電池用燃料電池容器を備え、気液分離部を介して容器内の燃料の蒸気が液体燃料供給系に補給される。このため、液体燃料供給系の燃料濃度の低下を抑制することができる。また、気化燃料を燃料極に直接供給せずに、気液分離部を経由させて一度液体燃料に溶解させてから燃料極に供給するため、燃料極に供給する燃料成分の濃度を安定化することができる。このため、燃料を補給するためのポンプや燃料電池の出力を安定化するための補助電源等の補器を設ける必要がない。よって、燃料電池の装置構成全体を簡素化、小型化することができる。

[0022] 本発明の燃料電池用燃料容器において、前記燃料ガス補給口に開閉可能なシャッターパート材が設けられた構成とすることができる。また、本発明の燃料電池において、前記液体燃料供給系への気化燃料の補給を開始および停止するシャッターパート材を有する構成とすることができる。こうすることにより、燃料電池の使用状況に応じてシャッターパート材を開閉し、気化燃料の液体燃料供給系への補給を調節することができる。このため、液体燃料供給系への気化燃料の補給をより一層制御性よく行うことができる。

[0023] 本発明の燃料電池において、前記液体燃料供給系は、前記燃料極に供給される

液体燃料が収容される燃料カートリッジと、前記燃料極または前記酸化剤極から排出される液体を回収する燃料回収部と、を備え、前記燃料電池用燃料容器が、前記燃料カートリッジと前記燃料回収部とに連通する液体燃料混合槽に前記燃料の蒸気を供給するように構成されてもよい。液体燃料混合槽に燃料の蒸気が供給される構成とすることにより、混合槽に収容された液体燃料の濃度の低下を抑制することができる。このため、燃料極または酸化剤極を通過した液体を混合槽に回収して再度燃料極に供給する燃料の循環経路を有する燃料電池においても、燃料極に供給する液体燃料の濃度を安定化することができる。

[0024] 本発明によれば、燃料極と、前記燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給系と、を有する燃料電池の運転方法であって、前記液体燃料供給系に、前記燃料極に供給される前記液体燃料の濃度より高濃度の気化燃料を供給しながら運転を行うことを特徴とする燃料電池の運転方法が提供される。

[0025] 本発明においては、燃料極に供給される前記液体燃料の濃度より高濃度の気化燃料を供給しながら燃料電池を運転するため、運転中に使用された燃料を気化燃料として液体燃料に溶解させて補給することができる。このため、簡便な方法で燃料極への燃料供給を安定的に行うことができる。このため、燃料電池を長期間安定的に運転することができる。

[0026] 本発明の燃料電池の運転方法において、前記燃料極を通過した残存燃料または酸化剤極で発生した水を回収しながら前記液体燃料を循環させて運転することができる。残存燃料または水を回収しながら液体燃料を循環させて運転させる際にも、気化燃料を補給しながら運転を行うことにより、燃料極への燃料供給を安定化することができる。

[0027] なお、これらの各構成の任意の組み合わせや、本発明の表現を方法、装置などの間で変換したものもまた本発明の態様として有効である。

### 発明の効果

[0028] 以上説明したように、本発明によれば、燃料電池の液体燃料供給系に気化燃料を補給することにより、燃料電池を小型化しつつ、燃料極への燃料の供給を安定的に行う技術が実現される。

## 図面の簡単な説明

[0029] [図1]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

[図2]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す上面図である。

[図3]図2をA-A'方向から見た図である。

[図4]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

[図5]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

[図6]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

[図7]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

[図8]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

[図9]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

[図10]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

[図11]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

[図12]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

[図13]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

[図14]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

[図15]実施例に係るメタノールガスの拡散速度の測定方法を説明する図である。

[図16]実施例に係る燃料容器の放置時間と燃料濃度の関係を示す図である。

[図17]実施例に係る燃料容器中の燃料濃度と拡散速度の関係を示す図である。

[図18]実施例に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

[図19]実施例に係る燃料電池の発電時間と電圧の関係を示す図である。

[図20]本実施形態に係る燃料電池のシャッターの構成を示す図である。

[図21]本実施形態に係る燃料電池のシャッターの構成を示す図である。

[図22]本実施形態に係る燃料電池のシャッターの構成を示す図である。

[図23]本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

## 符号の説明

[0030] 100 燃料電池本体

101 単セル構造

102 燃料極

- 104 基体
- 106 燃料極側触媒層
- 108 酸化剤極
- 110 基体
- 112 酸化剤極側触媒層
- 114 固体電解質膜
- 124 燃料
- 126 酸化剤
- 743 回転部
- 811 燃料容器
- 853 仕切板
- 1117 ポンプ
- 1234 ピン部
- 1235 蓋
- 1516 燃料電池
- 1517 液体燃料容器
- 1518 気化燃料容器
- 1519 気液分離膜
- 1520 気化燃料導入部
- 1521 気化燃料
- 1522 高濃度燃料容器
- 1523 高濃度燃料
- 1524 シヤッター
- 1525 回収管
- 1526 滴下部
- 1527 燃料吸収部
- 1528 気化燃料導入管
- 1529 高濃度燃料補充部

- 1530 蓋部
- 1531 スライド板
- 1532 高濃度燃料カートリッジ
- 1533 バネ部
- 1534 スライド板
- 1535 ストッパー
- 1536 本体接続部
- 1537 バネ部
- 1538 押さえ板
- 1539 カートリッジ接続部
- 1540 ストッパー
- 1541 シール材
- 1542 フック
- 1543 測定容器
- 1544 第一の容器
- 1545 第二の容器
- 1546 多孔質PTFE膜
- 1547 可動板
- 1548 支持部
- 1549 隔壁

#### 発明を実施するための最良の形態

[0031] 以下、本発明の実施の形態について、図面を用いて説明する。なお、すべての図面において、共通の構成要素には同一の符号を付し、適宜説明を省略する。

[0032] (第一の実施形態)

図1は、本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。図1の燃料電池1516は、単セル構造101、液体燃料容器1517、気化燃料容器1518、気液分離膜1519、および気化燃料導入部1520を備える。図1では、単セル構造101を一つ備える構成が例示されているが、第二の実施形態以降で後述するように、複

数の単セル構造101を備える構成とすることもできる。

[0033] 単セル構造101は、燃料極102、酸化剤極108および固体電解質膜114を含む。

図1の燃料電池においては、燃料極102に液体燃料容器1517中の燃料124が直接供給される。

[0034] 固体電解質膜114は、燃料極102と酸化剤極108を隔てるとともに、両者の間で水素イオンを移動させる役割を有する。このため、固体電解質膜114は、水素イオンの伝導性が高い膜であることが好ましい。また、化学的に安定であって機械的強度が高いことが好ましい。固体電解質膜114を構成する材料としては、スルfonyl基、リン酸基等の強酸基や、カルボキシル基等の弱酸基等の極性基を有する有機高分子が好ましく用いられる。こうした有機高分子として、スルfonyl化ポリ(4-フェノキシベンゾイル-1, 4-フェニレン)、アルキルスルfonyl化ポリベンゾイミダゾール等の芳香族縮合系高分子;スルfonyl基含有パーフルオロカーボン(ナフィオン(デュポン社製)(登録商標)、アシプレックス(旭化成社製));カルボキシル基含有パーフルオロカーボン(フレミオンS膜(旭硝子社製)(登録商標));スルfonyl化ポリエーテルエーテルケトン;スルfonyl化ポリエーテルスルfonyl;等が例示される。

[0035] 燃料極102および酸化剤極108は、それぞれ、触媒を担持した炭素粒子と固体電解質の微粒子とを含む燃料極側触媒層106および酸化剤極側触媒層112をそれぞれ基体104および基体110上に形成した構成とすることができる。触媒としては、白金や白金とルテニウムの合金等が例示される。燃料極102および酸化剤極108の触媒は同じものを用いても異なるものを用いてもよい。

[0036] 燃料極側触媒層106の触媒としては、白金、金、銀、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、オスミウム、イリジウム、コバルト、ニッケル、レニウム、リチウム、ランタン、ストロンチウム、イットリウム、またはこれらの合金等が例示される。酸化剤極108に用いる酸化剤極側触媒層112の触媒としては、燃料極側触媒層と同様のものを用いることができ、上記例示物質を使用することができる。なお、燃料極側触媒層106および酸化剤極側触媒層112の触媒は同じものを用いても異なるものを用いてもどちらでもよい。

[0037] 燃料極102、酸化剤極108ともに、基体としては、カーボンペーパー、カーボンの

成形体、カーボンの焼結体、焼結金属、発泡金属等の多孔性基体を用いることができる。

[0038] 気化燃料容器1518は、気液分離膜1519を介して液体燃料容器1517に接続されている。また、気化燃料容器1518は気化燃料導入部1520に連通する。気化燃料1521は、気化燃料導入部1520から気液分離膜1519に供給され、気化燃料容器1518を経由して液体燃料容器1517に供給される。

[0039] 液体燃料容器1517および気化燃料容器1518の壁部の材料は、たとえば、ポリプロピレン、ポリエチレンなどのポリオレフィン、ポリカーボネート、ポリ塩化ビニル、ポリエーテルエーテルケトン、ポリスルfonyl、シリコーンまたはこれらの共重合体または混合物等の樹脂とすることができます。

[0040] 気液分離膜1519は、液体である燃料124に対する表面張力と空気等の気体に対する表面張力を異ならせ得る材料で構成することができる。または、多孔質体の表面をこのような材料で覆うことによって得られる部材を用いることもできる。気液分離膜1519には、たとえば撥液性の材料を用いることができる。たとえば、燃料124がメタノールまたはその水溶液である場合、メタノールの透過を抑制する膜とする。

[0041] 気液分離膜1519の材料として、具体的には、たとえば、ポリテトラフロオロエチレン(以下、PTFEとも呼ぶ。)、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体(FEP)等のパーフルオロポリマー、ポリメタクリル酸1H, 1H-パーフルオロオクチル、ポリアクリル酸1H, 1H, 2H, 2H-パーフルオロデシル等のポリフルオロアルキルアクリレート、ポリフッ化ビニル、ポリフッ化エチレンプロピレン等のフルオロオレフィンが挙げられる。また、ポリ塩化ビニリデン、ポリアセタール、ブタジエンとアクリルニトリルとの共重合体樹脂等を用いることもできる。

[0042] このうち、PTFE等のパーフルオロポリマーは、気体の選択透過性および成膜特性のバランスに優れる点で好ましく用いられる。気液分離膜1519は、空気等の気体を効率よく透過させる必要があるため、膜厚を薄くすることが望まれる。膜の物性にもよるが、通常、5  $\mu$  m以下の薄膜に形成することが望まれる。PTFE等のパーフルオロポリマーを用いた場合、このような非多孔質の薄膜を安定的に形成することができる。

[0043] また、ポリメタクリル酸1H, 1H-パーフルオロオクチル、ポリアクリル酸1H, 1H, 2H, 2H-パーフルオロデシル等のフルオロアルキルアクリレートポリマーは、成膜特性が良好で、薄膜を容易に形成でき、また、二酸化炭素の選択透過性を有するため、好ましく用いられる。フルオロアルキルアクリレートポリマーは、ポリカルボン酸の一部または全部を、フルオロアルコールでエステル化することにより得られる。

[0044] 気液分離膜1519を構成するポリマーの分子量は、好ましくは1000～1,000,000、さらに好ましくは3000～100,000とする。分子量が大きすぎると溶液の調整が困難となり、制限透過層の薄層化が困難となることがある。分子量が小さすぎると充分な制限透過性が得られない場合がある。なお、ここでいう分子量とは数平均分子量をいい、GPC(Gel Permeation Chromatography)により測定することができる。

[0045] また、ガス透過性の非多孔質膜を多孔質膜上に積層し、気液分離膜1519としてもよい。このとき、非多孔質膜には上述した膜を用いることができる。また、多孔質膜は、たとえば、ポリエーテルスルфонやアクリル共重合体などからなる膜である。具体的には、ゴアテックス(ジャパンゴアテックス社製)(登録商標)、バーサポア(日本ポール社製)(登録商標)、スープア(日本ポール社製)(登録商標)などが例示される多孔質膜の膜厚は、たとえば50  $\mu$  m以上500  $\mu$  m以下とする。こうすることにより、気液分離膜1519の機械的強度を向上させることができる。よって、機械的強度にすぐれた燃料電池1516を安定的に得ることができる。

[0046] このような積層膜は、たとえば、多孔質膜の表面に非多孔質膜の材料となる上述した樹脂の溶液をスピンドルコート法により塗布し、乾燥することにより形成される。

[0047] また、気液分離膜1519として、ガス透過性の多孔質膜を用いてもよい。このとき、多孔質膜の材料として、非多孔質の気液分離膜1519に用いられる材料を用い、これを多孔質化してもよい。たとえば、多孔質PTFE膜等のパーフルオロポリマーの多孔質膜を用いることができる。この場合、気液分離膜1519の膜厚を、たとえば10  $\mu$  m以上500  $\mu$  m以下とすることができる。

[0048] 燃料電池1516において、単セル構造101の燃料極102には、液体燃料容器1517から燃料124が供給される。燃料124は単セル構造101に供給される液体燃料を

指し、燃料成分である有機溶媒を必須成分とする。また、燃料124は、燃料成分となる有機溶媒の水溶液とすることができる。また、液体燃料容器1517に収容される燃料124として、メタノール、エタノール、ジメチルエーテル、または他のアルコール類を用いることができる。また、シクロパラフィン等の液体炭化水素等、ホルマリン、ギ酸、あるいはヒドラジン等の液体燃料を用いることができる。また、液体燃料にはアルカリを加えることもできる。これにより、水素イオンのイオン伝導性を高めることができる。

[0049] また、気化燃料容器1518には、気化燃料導入部1520から気化燃料1521が補給される。気化燃料導入管1520は、たとえば、所定の位置に収容された気化燃料1521を気化燃料容器1518に導く管とすることができる。また、たとえば、気化燃料導入管1520は、気化燃料1521を収容する室であってもよい。気化燃料1521の補給は、たとえば、燃料成分を燃料124よりも高濃度で含む液体燃料または固形燃料を用い、この燃料成分を気化させる方法により行うことができる。このとき、高濃度液体燃料または固形燃料中の燃料成分を気化させる気化室が気化燃料導入部1520に連通している構成とすることができます。気化燃料1521の補給の具体的な方法については、第二の実施形態以降で詳細に説明する。

[0050] 気化燃料容器1518中の気化燃料は、液体燃料容器1517に収容された燃料124の減少に伴い、気液分離膜1519を経由して液体燃料容器1517に移動する。たとえば、燃料成分がメタノール等の揮発性のアルコールである場合、気化したアルコールが液体燃料容器1517に収容された燃料124中に溶解し、拡散する。このような構成とすることにより、燃料電池1516の運転とともに減少する燃料成分を、気化燃料容器1518から必用な分だけ補給することが可能となる。このため、燃料を補給するためのポンプや燃料電池1516の出力を安定化するための補助電源等の補器を設ける必要がない。よって、燃料電池1516全体の構成を簡素化することができる。

[0051] また、燃料成分を一度気化して液体燃料容器1517に補給するため、気化燃料1521の原料として高濃度の液体燃料または固形化燃料を用いることができる。このため、燃料電池1516全体を小型化することができる。

[0052] また、燃料極102には好適な濃度に希釀された液体の燃料124が供給されるため、燃料124がメタノール水溶液等である場合にも、クロスオーバーの発生を好適に抑

制することができる。

[0053] このように、燃料電池1516は、気液分離膜1519を介して気化燃料1521と液体の燃料124とが接触する構成となっており、気化燃料1521が燃料124に補給される。よって、小型で簡素な構成でありながら、すぐれた出力を安定的に発揮することができる。

[0054] なお、単セル構造101の酸化剤極108には、酸化剤126が供給される。酸化剤126としては、通常、空気を用いることができるが、酸素ガスを供給してもよい。

[0055] なお、燃料電池1516においては、単セル構造101と気化燃料容器1518との間の隔壁全面を気液分離膜1519としたが、気化燃料容器1518と単セル構造101の隔壁の一部を気液分離膜1519としてもよい。

[0056] また、燃料電池1516においては、気化燃料導入部1520から気化燃料容器1518に気化燃料1521が供給される構成としたが、気化燃料導入部1520を設けない構成とすることもできる。この場合、第二の実施形態以降で説明するように、たとえば、気化燃料容器1518に気化燃料1521または気化燃料1521を生じさせる固形もしくは液体の燃料を配置しておくことができる。

[0057] (第二の実施形態)

本実施形態では、第一の実施形態に記載の単セル構造101を複数有する燃料電池の構成について説明する。ここでは、複数の単セル構造101が平面内にスタックされた構成を例に説明する。本実施形態に係る燃料電池は、携帯電話、ノート型等の携帯型パーソナルコンピュータ、PDA(Personal Digital Assistant)、各種カメラ、ナビゲーションシステム、ポータブル音楽再生プレーヤ等の小型電気機器に適用可能である。

[0058] 図2は、本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す図である。図2の燃料電池は、複数の単セル構造101、燃料容器811、仕切板853、および回収管1525を含む。回収管1525は、単セル構造101の燃料極102を通過した液体および酸化剤極における電池反応で生成する水を回収し、燃料容器811に戻す経路となる。

[0059] 図3は、図2のA-A'断面図である。図3の燃料電池においては、1枚の固体電解質膜114の一方の面に複数の燃料極102が設けられ、他方の面に複数の酸化剤極

108が設けられており、複数の単セル構造101が固体電解質膜114を共有し、同一の平面内に配置された構成となっている。また、燃料容器811が燃料極102の外側を覆い囲うように設けられており、燃料容器811中に収容された燃料124が燃料極102に直接供給される。

[0060] 図2および図3中に示した燃料容器811は、図1における液体燃料容器1517に対応し、燃料極102に供給される燃料124が収容されている。また、図3において、燃料容器811の底部に気化燃料容器1518が設けられており、気化燃料容器1518と燃料容器811の間の一部が気液分離膜1519となっている。また、燃料容器811の側方に、シャッター1524を介して気化燃料容器1518に連通する高濃度燃料容器1522が設けられている。

[0061] 燃料容器811に収容された燃料124は、燃料容器811内に設けられた複数の仕切板853に沿って流れ、複数の単セル構造101に順次供給される。単セル構造101に供給された燃料124のうち、電池反応に用いられたものは、回収管1525から燃料容器811に戻される。上記式(1)および式(2)に示したように、燃料電池の使用に伴い、燃料124中の水の割合が増加するため、燃料124中の燃料成分の濃度が減少する。

[0062] すると、高濃度燃料容器1522と燃料容器811との間に設けられた気液分離膜1519を経由して、燃料容器811中に気化燃料1521が補充される。ここで、高濃度燃料容器1522に収容された高濃度燃料1523は気化し、シャッター1524を通過した後、気液分離膜1519を経由して燃料容器811に収容された燃料124に溶解する。このため、単セル構造101の燃料極102には、所定の濃度の燃料124を安定的に供給することができる。

[0063] シャッター1524は、気化燃料容器1518と高濃度燃料容器1522との間を隔て、開閉可能な構成となっている。シャッター1524の開閉により、気化燃料容器1518内の燃料蒸気の濃度を調節することができる。シャッター1524が開くと、高濃度燃料容器1522の側から気化燃料1521が気化燃料容器1518に移動できる。シャッター1524は、たとえば以下の構成とすることができます。

[0064] 図20(a)および図20(b)は、図3の燃料電池のシャッター1524の近傍を示す図で

ある。図20(a)は、シャッター1524が閉じた状態を示し、図20(b)は、シャッター1524が開いた状態を示す。シャッター1524は、可動板1547と回転部743からなる。シャッター1524の開閉は、可動板1547と掛合している回転部743が回転することにより可動板1547が摺動してなされる。

[0065] 図21(a)および図21(b)は、シャッター1524の別の構成を示す図である。図21(a)および図21(b)も、図3の燃料電池のシャッター1524の近傍を示す図である。図21(a)は、シャッター1524が閉じた状態を示し、図21(b)は、シャッター1524が開いた状態を示す。

[0066] 図21(a)および図21(b)では、シャッター1524を構成する可動板1547が、回転部743を軸として回動することにより、高濃度燃料容器1522と気化燃料容器1518との間の開閉が行われる。

[0067] また、図22(a)および図22(b)は、シャッター1524の別の構成を示す図である。図22(a)および図22(b)も、図3の燃料電池のシャッター1524の近傍を示す図である。図22(a)は、シャッター1524が閉じた状態を示し、図22(b)は、シャッター1524が開いた状態を示す。

[0068] 図22(a)および図22(b)では、シャッター1524を構成する可動板1547を支持する支持部1548が、回転部743と掛合している。そして、回転部743が回転することにより、支持部1548が摺動するため、これに固定された可動板1547が気化燃料容器1518の一端を開閉する。

[0069] シャッター1524を設けることにより、燃料電池を使用していない時には気化燃料容器1521の供給を停止することができる。なお、シャッター1524は、開または閉の2段階に切り替える構成であってもよいし、気化燃料容器1518の端面の被覆率を所定の段階で調節するように構成されていてもよい。気化燃料容器1518と高濃度燃料容器1522の界面の被覆率を調節可能な構成とすることにより、シャッター1524を用いて気化燃料容器1521の供給をさらに精密に調節することができる。また、図2および図3には示していないが、シャッター1524の開閉を制御する制御部を燃料電池に設けることもできる。こうすれば、シャッター1524の開閉をさらに確実に調節することができる。

[0070] 本実施形態の燃料電池では、高濃度燃料容器1523を気化して燃料容器811に補給

するため、燃料容器811中の燃料が消費された際に、必要な量の燃料成分が気化燃料1521として補給される。たとえば、燃料成分がメタノール等の揮発性にすぐれた物質であれば、高濃度燃料1523は室温中でも自然気化し、容易に燃料容器811中の液体の燃料124に溶解し、拡散する。このため、ポンプ等の燃料補給用の補器を用いることなく、簡素な構成で安定的な燃料の補給が可能となる。このとき、気液分離膜1519およびシャッター1524が設けられているため、気化燃料1521を燃料容器811の側に所定のタイミングで選択的に移動させることができる。また、燃料極102には燃料容器811から液体の燃料124が供給されるため、燃料極102に供給する燃料124を所定の濃度に安定的に調節することができる。また、高濃度燃料容器1522中の高濃度燃料1523が収容されるため、高濃度燃料容器1522の小型化が可能である。

[0071] なお、本実施形態において、気液分離膜1519およびシャッター1524の配置は上述したものに限らず、種々の構成を採用することができる。以下、配置の異なる燃料電池の構成を例示する。

[0072] たとえば、図4は、本実施形態に係る燃料電池の別の構成を示す断面図である。図4では、単セル構造101の上部を覆うように燃料容器811が設けられている。また、高濃度燃料容器1522の上部にシャッター1524が設けられている。このような構成とすれば、高濃度燃料容器1522中で自然気化した気化燃料1521の気化燃料容器1518までの移動経路を図3の構成よりも短縮することができる。このため、燃料電池の構成をさらに小型化、簡素化することができる。

[0073] また、図5は、本実施形態に係る燃料電池のまた別の構成を示す断面図である。図5の燃料電池の基本構成は図4の燃料電池と同様であるが、気液分離膜1519を燃料容器811の側面に設けた点が異なる。この構成においても、燃料容器811に気化燃料1521を安定的に供給することができる。

[0074] また、図6は、本実施形態に係る燃料電池のさらにまた別の構成を示す断面図である。図6の燃料電池も基本構成は図4の燃料電池と同様であるが、気液分離膜1519とシャッター1524とが互いに隣接して設けられた点が異なる。気液分離膜1519が燃料容器811側に設けられ、シャッター1524が高濃度燃料容器1522の側に設けられ

る。この構成では、シャッター1524を閉じた際に気液分離膜1519がシャッター1524により被覆されるため、燃料容器811に収容された燃料124への気化燃料1521の供給をさらに精密に調節することができる。

[0075] また、以上の例において、気液分離膜1519を、たとえば、燃料容器811中の燃料124の濃度に応じて開口率が変化する材料で構成してもよい。こうすれば、気液分離膜1519自体に気化燃料1521の補給を調節する機能を付与することができる。

[0076] 以上の構成の燃料電池において、高濃度燃料1523は、燃料成分を高濃度で含む液体燃料または固形燃料とすることができます。高濃度燃料1523を固形化燃料とすることにより、高濃度燃料1523の漏出を抑制することができる。このため、燃料電池をさらに安全に使用することができる。また、高濃度燃料1523を液体とする場合にも、気化燃料1521として燃料容器811に補給するため、高濃度燃料1523の液体の漏出を抑制することができる。

[0077] 高濃度燃料1523を、高濃度の液体燃料とする場合、たとえば、燃料成分の濃度が60体積%～100体積%程度の燃料成分の水溶液または原液とすることができます。60体積%以上の有機液体燃料またはその水溶液とすることにより、燃料電池の液体燃料供給系に供給する燃料124よりも高濃度の液体燃料を容器内に収容しておくことができる。このため、小型で長期間の燃料補給が可能な燃料容器を安定的に得ることができる。

[0078] また、高濃度燃料1523を液体燃料とする場合、燃料電池を次の構成としてもよい。図23は、本実施形態に係る燃料電池のまた別の構成を示す断面図である。図23に示した燃料電池の基本構成は図4に示した燃料電池と同様であるが、気化燃料容器1518と高濃度燃料容器1522とを隔てる側面にシャッター1524が設けられている点と、高濃度燃料容器1522内に気液分離膜1519が設けられ、高濃度燃料容器1522が気液分離膜1519により二室に仕切られている点が異なる。

[0079] 高濃度燃料容器1522に気液分離膜1519を設けて二室に仕切ることにより、高濃度燃料容器1522の一方の室を高濃度燃料収容室とし、液体燃料である高濃度燃料1523を高濃度燃料収容室内に確実に存在させて、高濃度燃料容器1522の外部に漏出するのを抑制することができる。また、他方の室を高濃度燃料1523の気化

室とすることができます。ここで、気化室は、気化燃料容器1518に当接する側の室であり、シャッター1524は気化室と気化燃料容器1518との間に設けられている。このような構成とすることにより、高濃度燃料収容室に収容された液体燃料から気化した気化燃料1521を選択的に気液分離膜1519から気化室に存在させておくことができる。そして、シャッター1524の開閉を調節し、気化燃料1521の気化燃料容器1518への供給量を調節することができる。また、燃料電池本体100に気化燃料1521をさらに選択的に補給することができる。このような気液分離膜1519として、たとえば、第一の実施形態にて例示したガス透過性の非多孔質膜等を用いることができる。

[0080] なお、高濃度の液体燃料は、液体燃料を吸収させる多孔質材料であるウイッキング材に含浸させておくこともできる。ウイッキング材は、たとえば発泡体などの多孔質材料で構成することができる。ウイッキング材の材料として、具体的には、たとえば、ポリウレタン、メラミン、ナイロンなどのポリアミド、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレートなどのポリエステル、セルロース、またはポリアクリロニトリルなどの樹脂を用いることができる。

[0081] また、高濃度燃料1523を固形燃料とする場合、たとえば、燃料成分の液体をゲル化して用いることができる。ゲル化燃料に用いるゲル化剤としては、燃料電池の使用温度で安定な種々の材料を燃料成分の種類に応じて適宜選択して用いることができる。たとえば、燃料成分がメタノール等のアルコールである場合、ゲル化材として、たとえば、ポリアクリルアミド、ポリエチレンオキサイド、ポリアクリル酸塩、ポリビニルアルコール等の高分子材料の架橋物を用いることができる。これらの材料は、単独で用いてもよいし、二種以上を組み合わせて用いてもよい。また、たとえば、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、カルボキシメチルセルロース等のセルロース誘導体、カルボキシビニルポリマー(カルボマー)等のいわゆる半合成高分子材料の架橋物を用いてもよい。

[0082] また、高分子のゲル化剤を用いずに固形燃料を得ることもできる。たとえば、燃料成分がアルコールである場合、ステアリン酸ナトリウム等の脂肪酸と、水酸化ナトリウム等の水酸化物とを混合し、けん化反応によりゲル状のステアリン酸ナトリウムを得ることにより固形燃料とすることができます。また、水酸化ナトリウムに変えて、ホウ砂 $\text{Na}_2[\text{B}_4\text{O}_7]$

$\text{5}(\text{OH})_4\text{]}\cdot 8\text{H}_2\text{O}$ などの水中でアルカリ性を示す化合物を用いてもよい。

[0083] 図2～図6に示した燃料電池では、高濃度燃料1523を液体としても固形としてもよい。また、高濃度燃料1523を高濃度液体燃料とする場合、燃料電池を以下の構成とすることもできる。図7は、本実施形態に係る燃料電池の別の構成を示す断面図である。図7に示した燃料電池の基本構成は図3に示した燃料電池と同様であるが、高濃度燃料容器1522において高濃度燃料1523の滴下速度または滴下量を調節して気化燃料1521の補給を制御する点が異なる。

[0084] 図7において、高濃度燃料容器1522は滴下部1526を有し、滴下部1526から高濃度燃料1523が滴下される位置に燃料吸収部1527が設けられている。燃料吸収部1527は、たとえば、高濃度燃料1523を吸収する多孔質体とすることができる。多孔質体の材料は、燃料成分に対する耐性を有する材料であればよく、たとえば、SUS、Ti、Ni、Al等の金属；シリカ、アルミナ、ジルコニア等の金属酸化物；炭化ケイ素、炭化チタン、ゼオライト等のセラミックス；またはセルロース、ポリウレタン等の高分子材料；とすることができる。なお、高分子材料としては、他に、前述のウイッキング材として利用される材料が挙げられる。

[0085] 図7の燃料電池においては、滴下部1526から滴下した高濃度燃料1523を燃料吸収部1527に吸収させた後、燃料吸収部1527に吸収させた燃料が気化して気化燃料容器1518に補給される構成となっている。このため、シャッター1524を設けて開閉させなくても、滴下部1526からの滴下量または滴下速度を調節することにより、気化燃料1521の補給を調節することができる。

[0086] また、高濃度燃料1523を固形燃料とする場合、燃料電池を次の構成としてもよい。図8は、本実施形態に係る燃料電池のまた別の構成を示す断面図である。図8に示した燃料電池の基本構成は図4に示した燃料電池と同様であるが、気化燃料容器1518と高濃度燃料容器1522とを隔てる側面にシャッター1524が設けられている点と、高濃度燃料容器1522内に隔壁1549が設けられた点が異なる。

[0087] 隔壁1549は、高濃度燃料容器1522を燃料収容室と気化室とに隔てる部材であり

、ガス透過性を有する材料により構成される。隔壁1549の材料として、具体的には、図7に示した燃料電池において燃料吸収部1527として利用可能な材料を用いることができる。高濃度燃料容器1522内に隔壁1549を設けることにより、固体燃料である高濃度燃料1523を高濃度燃料容器1522の所定の領域に保持して容器外に漏出するのを抑制しつつ、これを気化して燃料容器811の側に確実に供給することができる。また、高濃度燃料1523を固体燃料とすることにより、高濃度燃料容器1522の配置方向によらず、高濃度燃料1523を気化して燃料容器811に安定的に供給することができる。また、高濃度燃料1523の漏出を抑制することができる。このため、携帯型の電気機器により一層好適に用いることができる。

[0088] なお、以上の構成において、シャッター1524にかえて小型のポンプを用いてもよい。図9は、ポンプを有する燃料電池の構成を示す断面図である。図9の燃料電池の基本構成は図3に示した燃料電池と同様であるが、高濃度燃料容器1522中の高濃度燃料を気化し、気化燃料1521をポンプ1117を用いて気化燃料導入管1528から気化燃料容器1518に供給する点が異なる。

[0089] ポンプ1117としては、たとえば消費電力が非常に小さい小型の圧電モーター等の圧電素子を用いることができる。また、図9では図示していないが、燃料電池にポンプ1117の動作を制御する制御部を設けることができる。この構成によれば、ポンプ1117の排気速度を調節することにより、気化燃料1521の供給量を調節することができるため、気化燃料1521の供給を確実に制御することができる。

[0090] また、以上の構成において、高濃度燃料1523が高濃度の液体燃料である場合や、ゲル化燃料であってもある程度の流動性を有している場合、高濃度燃料容器1522を高濃度燃料1523の補充が可能な構成としてもよい。ここでは、図4に示した燃料電池の場合を例に、説明する。

[0091] 図10は、本実施形態に係る燃料電池の構成を示す断面図である。図10の燃料電池の基本的な構成は図4に示した燃料電池と同様であるが、高濃度燃料容器1522に、高濃度燃料1523の収容室に連通する開閉可能な高濃度燃料補充部1529が設けられた点が異なる。なお、図10では、高濃度燃料補充部1529が高濃度燃料容器1522の上部の壁部に設けられているが、高濃度燃料補充部1529は高濃度燃料

容器1522の側壁に設けることもできる。

[0092] 高濃度燃料補充部1529を設けることにより、燃料電池の使用に伴い高濃度燃料1523が消費された場合にも、高濃度燃料補充部1529から高濃度燃料1523を注入し、補充することができる。このため、燃料電池をさらに長期間安定的に運転させることができる。

[0093] 高濃度燃料補充部1529の構成は、高濃度燃料1523の補充時に開となり、それ以外の燃料電池の使用時には確実に閉となる構成であれば種々の態様を採用することができる。たとえば、高濃度燃料補充部1529は、高濃度燃料容器1522の壁部を貫通する開口と、開口を閉止する閉止部材から構成されてもよい。このとき、閉止部材を壁部にネジ止め等により装着し、高濃度燃料1523の漏出を防止する構成としてもよい。また、たとえば、高濃度燃料容器1522の壁部を貫通する開口と、開口を被覆するキャップとを有する構成としてもよい。また、たとえば、高濃度燃料容器1522の壁部を貫通する開口と、壁部に沿ってスライドすることにより開口を開閉するスライド板とを有する構成としてもよい。

[0094] また、高濃度燃料1523が固形燃料である場合、高濃度燃料容器1522に開閉可能な蓋部を設けることにより、固形燃料の補充が可能となる。図11(a)および図11(b)は、蓋部の設けられた高濃度燃料容器1522を有する燃料電池の構成を示す図である。図11(a)および図11(b)に示した燃料電池の基本構成は図4と同様であるが、高濃度燃料容器1522の側壁に開閉可能な蓋部1530が設けられている。気化燃料容器1518の上部壁面を構成する筐体と、高濃度燃料容器1522の側部壁面を構成する蓋部1530とは、ピン部1234を有するちょうどがいにより接続されている。また、図11(a)および図11(b)には示していないが、高濃度燃料容器1522は、蓋部1530を閉じた状態で固定する固定部材を有する。

[0095] 図11(a)および図11(b)に示した燃料電池において、ピン部1234を回転中心として蓋部1530を回転させることにより、高濃度燃料容器1522の側面が開く。高濃度燃料容器1522に高濃度燃料1523を補充する際には、蓋部1530を開き、高濃度燃料容器1522の底部に設けられたスライド板1531を高濃度燃料容器1522の外側に向かって摺動させ、引き出す。図11(a)には、蓋部1530を開き、スライド板1531を

引き出した状態が示されている。そして、新しい固形燃料をスライド板1531の上に設置し、スライド板1531を高濃度燃料容器1522の内部に向かって摺動させることにより、高濃度燃料1523が高濃度燃料容器1522の内部に収容される。そして、蓋部1530を閉じればよい(図11(b))。

[0096] なお、図11では、ピン部1234を回転中心として蓋1235を回転して閉じることで高濃度燃料容器1522を開閉する構成としたが、開閉方法としてはこれに限定されるものではなく他にもツメ等を引っ掛け合致させる方式やスライドロック方式等で装着することができる。

[0097] また、以上の燃料電池では、気液分離膜1519が気化燃料容器1518に設けられた構成を示したが、本実施形態の燃料電池において、気液分離膜1519が高濃度燃料容器1522に設けられていてもよい。たとえば、図6に示した燃料電池において、気液分離膜1519およびシャッター1524を高濃度燃料容器1522に設けてよい。この場合、シャッター1524を開くことにより、気液分離膜1519を経由して高濃度燃料容器1522中の気化燃料1521を気化燃料容器1518に移動させることができる。

[0098] また、図3の燃料電池においては、複数の単セル構造101が1枚の固体電解質膜114を共有する構成としたが、それぞれの単セル構造101が独立に固体電解質膜114を有し、複数の単セル構造101が平面内に集積された構成としてもよい。こうすることにより、隣接する単セル構造101の電位が異なる場合に、固体電解質114の面方向にプロトンが移動することの抑制が図られる。

[0099] (第三の実施形態)

以上の実施形態に記載の燃料電池において、高濃度燃料1523を収容する高濃度燃料容器1522が燃料カートリッジであってもよい。燃料カートリッジは、燃料電池本体から着脱可能であり、交換および携帯が可能である。

[0100] 図12(a)および図12(b)は、燃料カートリッジおよび燃料カートリッジが収容される高濃度燃料容器1522の構成を模式的に示す断面図である。この燃料電池は、燃料電池本体100および高濃度燃料カートリッジ1532からなる。図11に示した燃料電池と同様に、燃料電池本体100の側壁に開閉可能な蓋部1530が設けられており、高濃度燃料カートリッジ1532の挿入が可能に構成されている。

[0101] 図12(a)に示したように、高濃度燃料カートリッジ1532は、高濃度燃料1523を収容する収容室と、バネ部1533と、スライド板1534とを有する。スライド板1534に側方から力が加わると、バネ部1533が収縮する。また、高濃度燃料容器1522は、高濃度燃料カートリッジ1532のスライド板1534を固定するストッパー1535を有する。

[0102] 高濃度燃料カートリッジ1532の交換は、蓋部1530を開き、高濃度燃料カートリッジ1532を高濃度燃料容器1522の側方から挿入することにより行う。このとき、高濃度燃料カートリッジ1532を高濃度燃料容器1522内に収容すると、スライド板1534がストッパー1535に当接した位置からバネ部1533が伸縮するため、高濃度燃料カートリッジ1532を完全に収容して蓋部1530を閉じて固定部材(不図示)で固定すれば、高濃度燃料カートリッジ1532が高濃度燃料容器1522内に固定される(図12(b))。

[0103] 図12(a)および図12(b)に示した燃料電池では、バネ部1533を設けることにより、高濃度燃料カートリッジ1532を燃料電池本体100の内部に確実に固定し、安定に保持することができる。よって、携帯型の電気機器等に好適に用いることができる。また、簡素な構成で高濃度燃料カートリッジ1532の交換を容易に行うことができる。このため、高濃度燃料1523の補充が容易であり、燃料電池を長期間安定的に運転することができる。

[0104] なお、図12(a)および図12(b)に示した燃料電池において、気液分離膜1519が高濃度燃料カートリッジ1532に設けられていてもよい。たとえば、燃料電池本体100に高濃度燃料カートリッジ1532を挿入した際に、シャッター1524に対向するように気液分離膜1519を設けることができる。こうすれば、高濃度燃料カートリッジ1532から気化燃料容器1518にさらに確実に気化燃料1521を移動させることができる。

[0105] また、高濃度燃料カートリッジ1532の構成および高濃度燃料容器1522への装着方法は、上述の構成に限られず、種々の構成を採用することができる。たとえば、図13(a)および図13(b)は、高濃度燃料カートリッジ1532および高濃度燃料容器1522の別の構成を示す断面図である。

[0106] 図13(a)においては、高濃度燃料カートリッジ1532は固形の高濃度燃料1523が収容される収容室と、高濃度燃料カートリッジ1532内で収容室を外部と区画する燃

料吸收部1527とを有する。また、高濃度燃料カートリッジ1532には、本体接続部1536が設けられている。本体接続部1536は壁部の一部に凹状に形成されており、高濃度燃料容器1522に凸状に形成されたカートリッジ接続部1539に嵌合する形状となっている。また、高濃度燃料容器1522には、高濃度燃料カートリッジ1532を固定する押さえ板1538と、押さえ板1538の位置を可動にするための伸縮可能なバネ部1537が設けられている。

[0107] 高濃度燃料カートリッジ1532を高濃度燃料容器1522に装着する際には、バネ部1537を収縮させて高濃度燃料容器1522内に高濃度燃料カートリッジ1532を挿入するのに充分な空間を形成しておき、高濃度燃料カートリッジ1532を装着する。このとき、本体接続部1536とカートリッジ接続部1539を嵌合させて、押さえ板1538を高濃度燃料カートリッジ1532の壁面に当接させることにより、高濃度燃料カートリッジ1532が高濃度燃料容器1522内に固定される(図13(b))。

[0108] 本体接続部1536の凹部およびカートリッジ接続部1539の凸部は開口しているため、高濃度燃料カートリッジ1532を接続することにより、高濃度燃料容器の内部で気化した高濃度燃料1523が燃料電池本体100に移動可能となる。なお、高濃度燃料カートリッジ1532の使用前には、本体接続部1536の開口をたとえばシール部材でシールしておき、使用時にこれを剥離して用いることができる。

[0109] また、図14(a)および図14(b)は、高濃度燃料カートリッジ1532および高濃度燃料カートリッジ1532を装着可能に構成された高濃度燃料容器1522のまた別の構成を示す図である。図14(a)は高濃度燃料カートリッジ1532および高濃度燃料容器1522の断面図である。また、図14(b)は、これらの上面図である。図14(a)および図14(b)に示した燃料電池の基本的な構成は、図13(a)および図13(b)に示した燃料電池と同様であるが、押さえ板1538とバネ部1537で高濃度燃料カートリッジ1532を固定する方法にかえて、フック1542とストッパー1540により固定する構成となっている。

[0110] 図14(a)に示したように、高濃度燃料カートリッジ1532には、フック1542を固定するストッパー1540が設けられており、高濃度燃料容器1522のカートリッジ接続部1539にはフック1542が設けられている。このため、カートリッジ接続部1539を本体接

続部1536に嵌合させて、フック1542をストッパー1540に掛合することにより、高濃度燃料容器1522内に高濃度燃料カートリッジ1532が固定される(図14(b))。

[0111] なお、図14(a)および図14(b)では、高濃度燃料1523において、本体接続部1536の周囲にシール材1541が貼付されている。シール材1541は、弹性部材であり、たとえば、ガス透過性が低く柔軟性がある高分子材料を用いることができる。このような材料として、たとえば、エチレンプロピレンゴム、シリコーンゴム等のエラストマーを用いることができる。シール材1541をエチレンプロピレンゴムとする場合、エチレンとプロピレンの共重合体(EPM)またはエチレンとプロピレンと第3成分の共重合体(E-PDM)を用いることができる。

[0112] また、図13および図14に示した燃料電池において、高濃度燃料カートリッジ1532に設けられた燃料吸収部1527に、気液分離特性に優れた材料を用いることにより、これを気液分離膜1519として好適に用いることができる。このため、気化燃料容器1518に気化燃料をより一層確実に移動させることができる。

[0113] また、図13および図14に示した燃料電池の高濃度燃料カートリッジ1532において、燃料吸収部1527に代えて気液分離膜1519を設けてもよい。こうすれば、高濃度燃料容器1522がカートリッジ式である場合にも、これを高濃度燃料カートリッジ1532の所定の領域に確実に保持しておくことができる。また、高濃度燃料1523の気化した気化燃料1521が気液分離膜1519を選択的に通過して燃料電池本体100に移動する構成とすることができる。このため、図23に示した燃料電池と同様に、高濃度燃料1523が液体である場合にも、その漏出を抑制することができる。このような気液分離膜1519として、たとえば、第一の実施形態にて例示したガス透過性の非多孔質膜等を用いることができる。

[0114] このように、本実施形態の構成では、燃料成分を高濃度で含有する高濃度燃料容器1522を携帯可能なカートリッジ方式とすることができる。このため、燃料電池全体を小型化しつつ、すぐれた出力を長期間安定的に発揮させることができる。また、高濃度燃料1523を固形燃料とすることにより、カートリッジ方式にした際にも携帯時の漏出等を抑制し、使用時の安全性をより一層向上させることができる。

[0115] 以上、本発明を実施の形態に基づいて説明した。これらの実施の形態は例示であ

り、それらの各構成要素や各処理プロセスの組み合わせにいろいろな変形例が可能なこと、またそうした変形例も本発明の範囲にあることは当業者に理解されるところである。

[0116] たとえば、以上の実施形態では、気化燃料1521が液体燃料容器1517や燃料容器811の壁部の一部をなす気液分離膜1519を介して燃料124中に移動する構成を例に説明したが、気化燃料1521の供給部は、液体燃料の供給系のいずれに設けることもできる。たとえば、液体燃料の供給系として液体燃料供給管を有する場合、液体燃料供給管の壁の一部に気液分離膜1519を設け、液体燃料供給管が気液分離膜1519を介して気化燃料導入部1520または気化燃料容器1518に連通する構成とすることもできる。

[0117] また、以上の実施形態では、高濃度燃料容器1522に収容された高濃度燃料1523が自然気化する様子を中心に説明したが、燃料電池が高濃度燃料1523の気化量を調節する調節部材を備える構成としてもよい。気化量の調節は、たとえば高濃度燃料容器1522の温度を調節したり、高濃度燃料容器1522に振動を与えてたりすることにより行うことができる。

[0118] また、以上の実施形態において、燃料極102への液体の燃料124の供給に小型のポンプ1117を用いてもよい。ポンプ1117として、たとえば図9に示した燃料電池において使用可能なものを用いることができる。

## 実施例

[0119] (メタノールガスのメタノール水溶液への拡散速度の測定)

本実施例では、まず、気体のメタノールがメタノール水溶液に拡散する際の速度の測定を行った。図15は、測定に用いた容器を示す断面図である。図15において、測定容器1543内に、第一の容器1544、多孔質PTFE膜1546、および第二の容器1545を下からこの順に積層した。第一の容器1544と第二の容器1545とは、多孔質PTFE膜1546を介して連通しており、第一の容器1544中の気体が選択的に第二の容器1545の側に移動可能に構成されている。

[0120] 第一の容器1544中に純メタノールを収容し、第二の容器1545中に12mlの純水を収容した。第一の容器1544中のメタノールが気化してメタノールガスとなり、多孔

質PTFE膜1546を経由して第二の容器1545の側に移動する。すると、第二の容器1545に収容された純水にメタノールガスが溶解するため、メタノール濃度が増加する。

[0121] 測定容器1543を用いて第二の容器1545中の液体のメタノール濃度の経時変化を測定した。なお、測定開始時の第二の容器1545中の液体のメタノール濃度は0体積%である。また、第二の容器1545中の液体のメタノール濃度は、ガスクロマトグラフィーにより測定した。また、多孔質PTFE膜1546がメタノールガスに接触する面積は、10cm<sup>2</sup>とした。

[0122] 図16は、経過時間と第二の容器1545中のメタノール濃度の関係を示す図である。また、図17は、図16の結果より、第二の容器1545中の液体のメタノール濃度と拡散速度の関係を示す図である。ここで、上記実施形態で説明した燃料電池の単セル構造101について計算すると、たとえば60mA/cm<sup>2</sup>の電流密度で電流を供給するためには、0.016ml/h/cm<sup>2</sup>の純メタノールが必要となる。図17より、本実施例の方法を用いれば、上記の運転条件に充分なメタノール補給量が得られることがわかる。このため、高濃度メタノールをガス化して燃料124に供給する方式とすることにより、燃料電池を長期間安定的に運転させることができる。

[0123] また、図16および図17に示したように、第二の容器1545中のメタノール濃度が増加するにつれて拡散速度は減少した。そして、第二の容器1545中のメタノール濃度が増加すると高濃度メタノールの拡散が停止し、第二の容器1545中の液体のメタノール濃度が一定となる。このことから、多孔質PTFE膜1546を用いることにより、第二の容器1545中の液体のメタノール濃度を一定に保つことができる。このため、この方式を燃料電池の液体燃料供給系に適用することにより、ポンプ等の補器を用いることなく、燃料極102に所定の濃度の液体燃料を安定的に供給することができる。

[0124] (燃料電池への適用)

そこで、上述の構成を燃料電池に適用して発電特性の評価を行った。図18は、本実施形態で用いた燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。図18に示した燃料電池は、図1に示した燃料電池1516の構成と基本的には同様である。図18における気化燃料容器1518に連通する高濃度燃料容器1522は、図1における気化燃

料導入部1520に対応する。この構成では、高濃度燃料容器1522に配置された高濃度燃料1523が気化し、気化燃料として高濃度燃料容器1522から気化燃料容器1518、気液分離膜1519の順に移動し、液体燃料容器1517に収容された燃料124に溶解する。なお、図18には示していないが、燃料124を循環させる循環経路を設けた。

[0125] 図18の燃料電池について、室温中で1Aの定電流で放電させた際の電圧の経時変化を測定した。気液分離膜1519として、PTFEの多孔質膜を用いた。また、燃料124を循環させて運転した。

[0126] 燃料124として5体積%のメタノール水溶液を用いた。また、高濃度燃料1523として、純メタノールまたはゲル化剤を用いてゲル化した固体(ゲル)化メタノール燃料を用いた。表1は、実施例および比較例で用いた燃料を示す図である。表1において、「燃料」は、図18における燃料124に対応し、「高濃度燃料」は、図18における高濃度燃料1523に対応する。

[0127] [表1]

	燃 料	高 濃 度 燃 料	気 化 燃 料 接 触 面 積 (cm <sup>2</sup> )
実 施 例 1	5 体 積 % MeOH aq. 23ml	MeOH 5ml	5
実 施 例 2	5 体 積 % MeOH aq. 23ml	固 体 燃 料 5g (MeOH 6ml相当)	10
比 較 例	5 体 積 % MeOH aq. 28ml	—	5

[0128] 図19は、発電時間と電圧の関係を示す図である。図19より、高濃度燃料1523として純メタノールおよび固体メタノール燃料のいずれを用いた場合についても、10時間以上安定な出力が発揮されることが確認された。一方、比較例においては、使用したメタノール量自体は実施例と同等であるが、高濃度燃料1523からのメタノールの補給を行わなかったため、発電後の電圧降下が著しかった。

[0129] 以上の結果より、高濃度燃料1523を用いてこれをいったん気化した後燃料124に溶解させて供給することにより、燃料電池を長期間安定的に運転可能であることが明らかになった。

## 請求の範囲

[1] 固形または液体の燃料が配置される燃料電池用の容器であつて、前記容器内に収容された前記燃料の蒸気を燃料電池の液体燃料供給系に補給する燃料ガス補給口を備えることを特徴とする燃料電池用燃料容器。

[2] 固形または液体の燃料が配置される燃料配置部と、前記燃料配置部に連通し、前記燃料を気化する気化部と、前記気化部で気化した気化燃料を燃料電池の液体燃料供給系に補給する燃料ガス補給口と、を有することを特徴とする燃料電池用燃料容器。

[3] 請求項1または2に記載の燃料電池用燃料容器において、前記燃料ガス補給口に、気液分離部が設けられたことを特徴とする燃料電池用燃料容器。

[4] 請求項1乃至3いずれかに記載の燃料電池用燃料容器において、固形または液体の前記燃料が配置される燃料収容室と、前記燃料収容室で気化した前記燃料の蒸気を収容する気化室と、を備えることを特徴とする燃料電池用燃料容器。

[5] 請求項4に記載の燃料電池用燃料容器において、前記燃料収容室と前記気化室とが気液分離膜により区画されていることを特徴とする燃料電池用燃料容器。

[6] 請求項1乃至5いずれかに記載の燃料電池用燃料容器において、前記燃料は、有機液体燃料の固形化物であることを特徴とする燃料電池用燃料容器。

[7] 請求項1乃至6いずれかに記載の燃料電池用燃料容器において、前記燃料電池に着脱可能に設けられる燃料電池用燃料カートリッジであることを特徴とする燃料電池用燃料容器。

[8] 請求項1乃至7いずれかに記載の燃料電池用燃料容器において、前記燃料ガス補給口に開閉可能なシャッターパート材が設けられたことを特徴とする燃料電池用燃料容器。

[9] 燃料極と、前記燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給系と、前記液体燃料供給系に気化燃料を補給する気化燃料補給部と、を有し、前記液体燃料供給系と前記気化燃料補給部との間に、前記気化燃料を選択的に移動させる気液分離部が

設けられたことを特徴とする燃料電池。

[10] 燃料極と、前記燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給系と、請求項1乃至8いずれかに記載の燃料電池用燃料容器と、を備え、前記燃料電池用燃料容器と前記液体燃料供給系との間に、前記燃料の蒸気を前記液体燃料供給系に選択的に移動させる気液分離部が設けられたことを特徴とする燃料電池。

[11] 請求項9または10に記載の燃料電池において、前記液体燃料供給系への気化燃料の補給を開始および停止するシャッターパート材を有することを特徴とする燃料電池。

[12] 請求項10に記載の燃料電池において、

前記液体燃料供給系は、

前記燃料極に供給される液体燃料が収容される燃料カートリッジと、

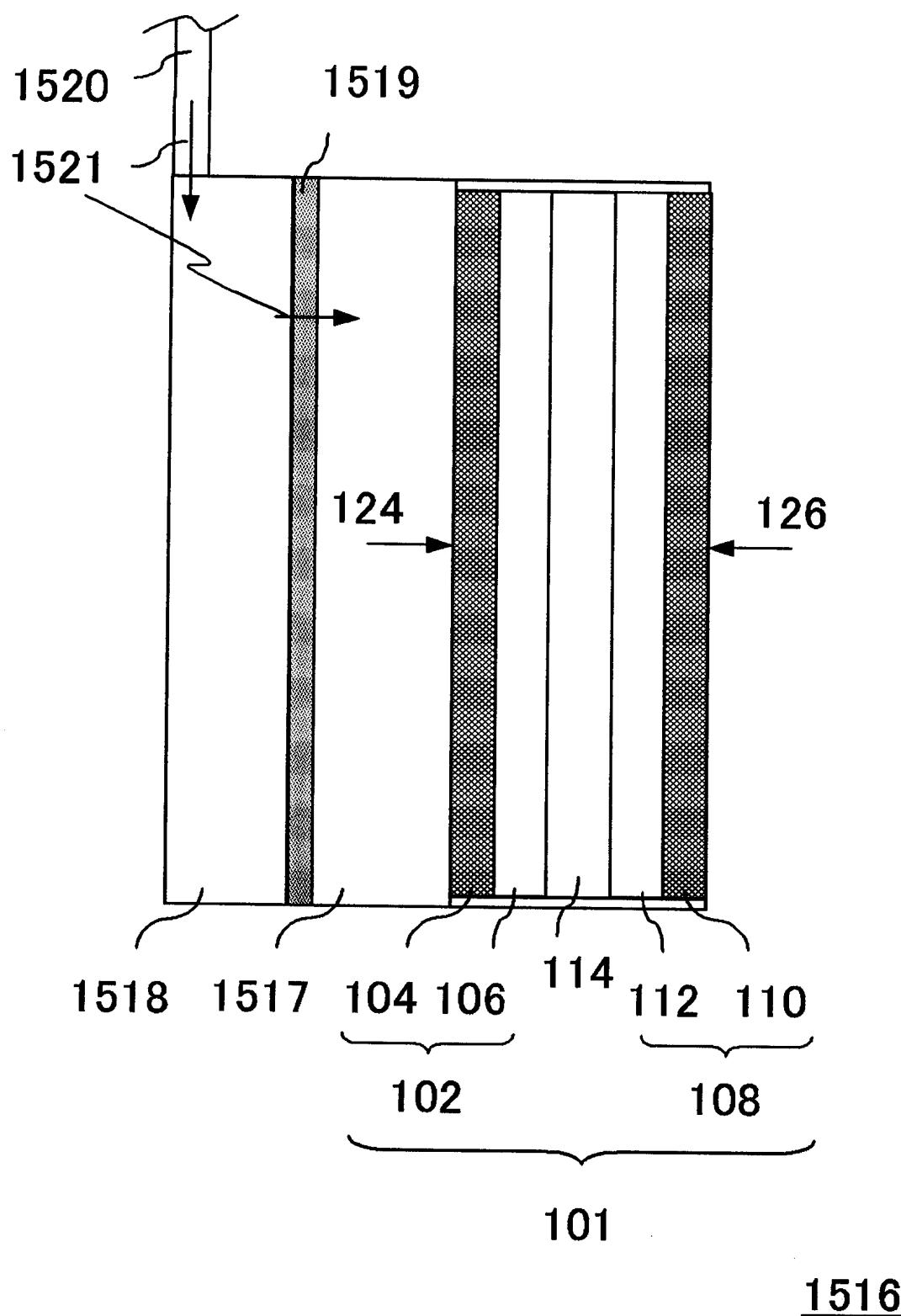
前記燃料極または前記酸化剤極から排出される液体を回収する燃料回収部と、を備え、

前記燃料電池用燃料容器が、前記燃料カートリッジと前記燃料回収部とに連通する液体燃料混合槽に前記燃料の蒸気を供給するように構成されたことを特徴とする燃料電池。

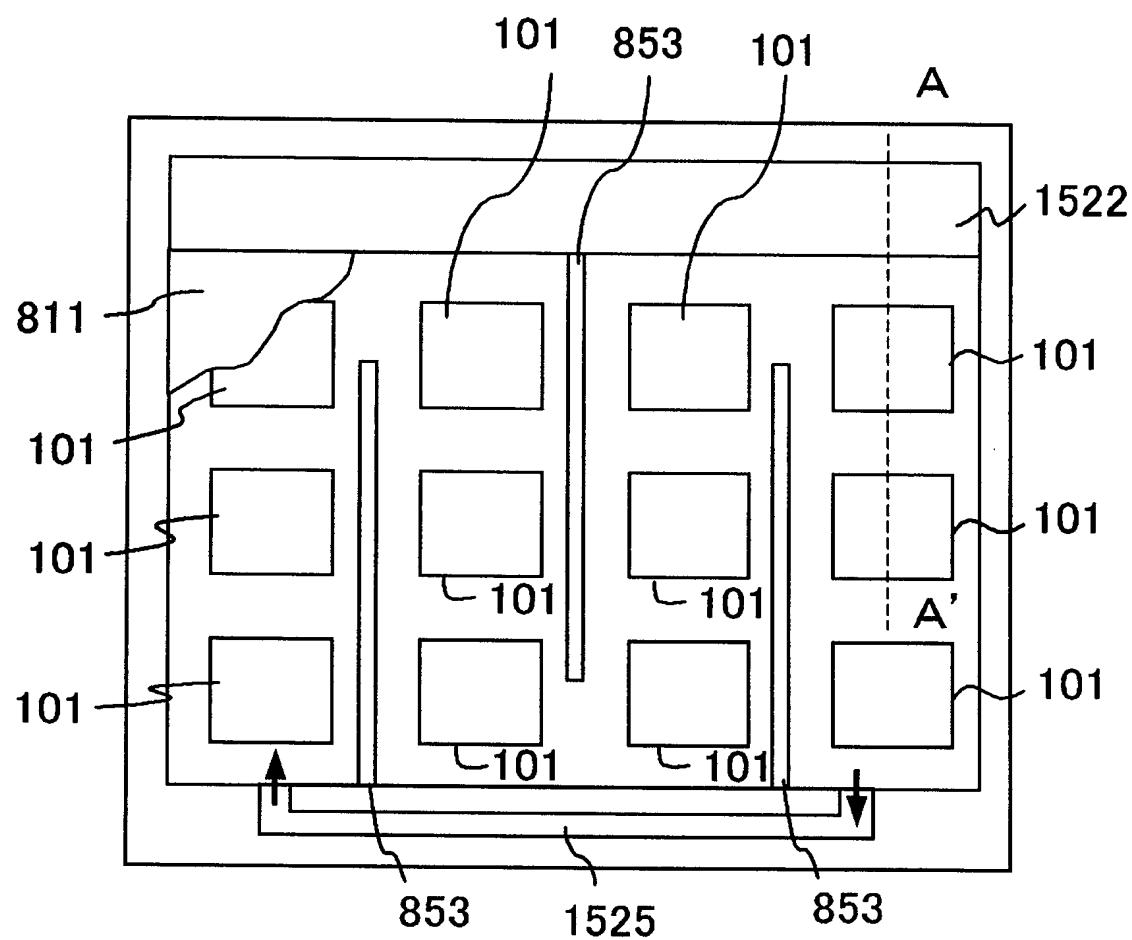
[13] 燃料極と、前記燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給系と、を有する燃料電池の運転方法であって、前記液体燃料供給系に、前記燃料極に供給される前記液体燃料の濃度より高濃度の気化燃料を供給しながら運転を行うことを特徴とする燃料電池の運転方法。

[14] 請求項13に記載の燃料電池の運転方法において、前記燃料極を通過した残存燃料または酸化剤極で発生した水を回収しながら前記液体燃料を循環させて運転することを特徴とする燃料電池の運転方法。

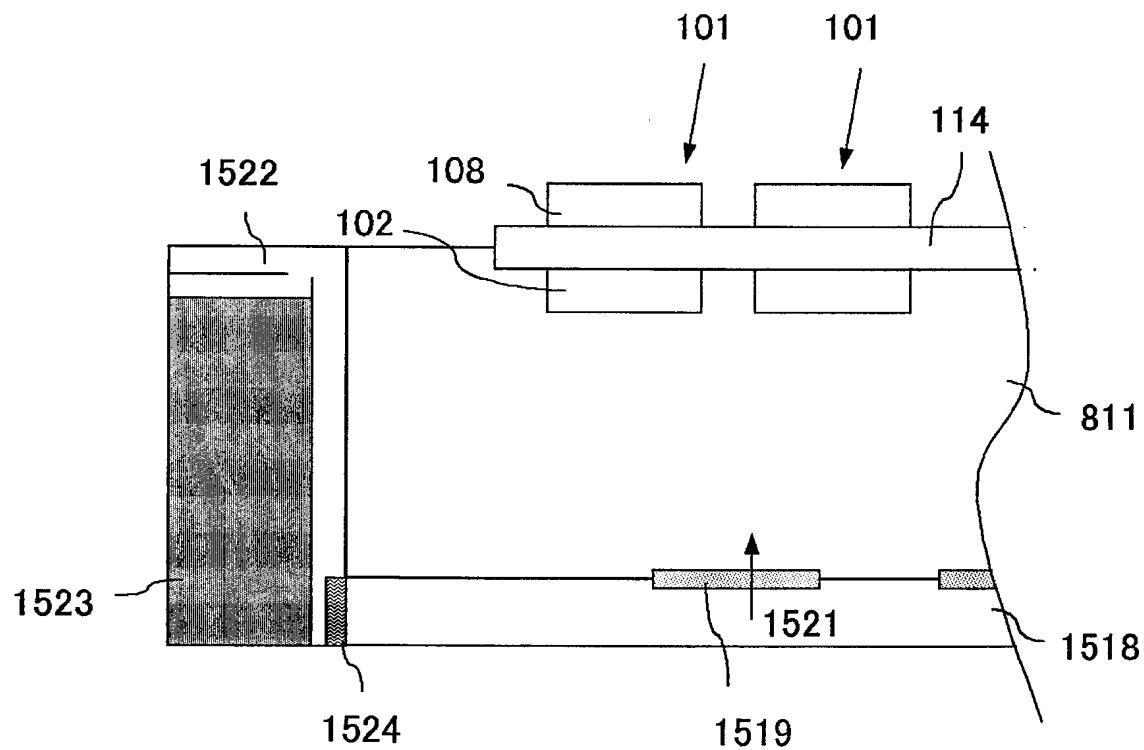
[図1]



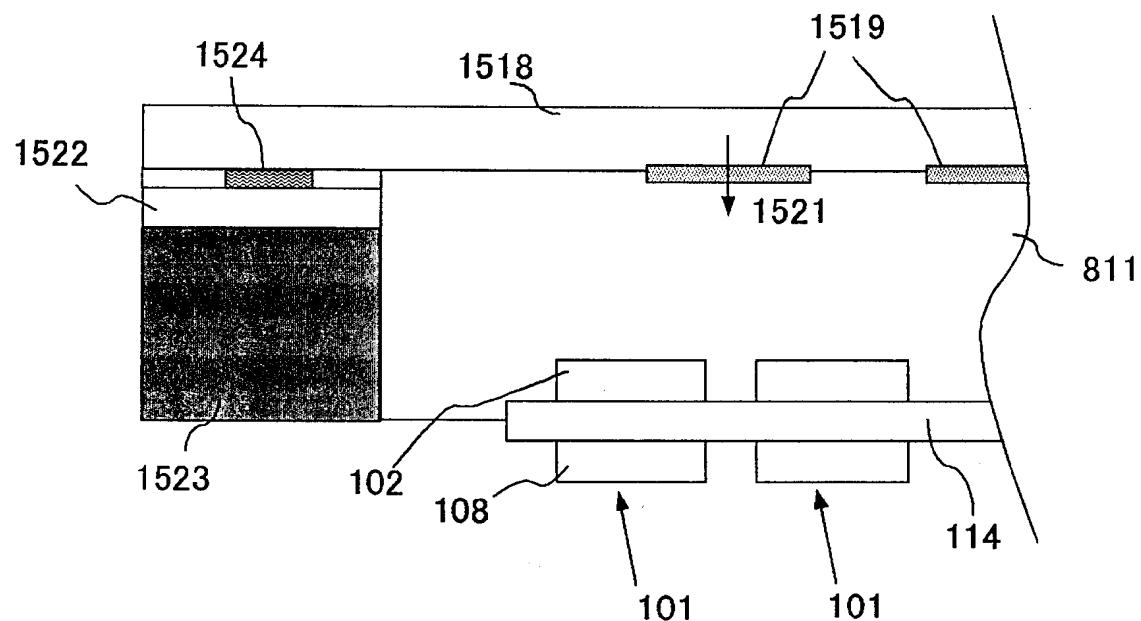
[図2]



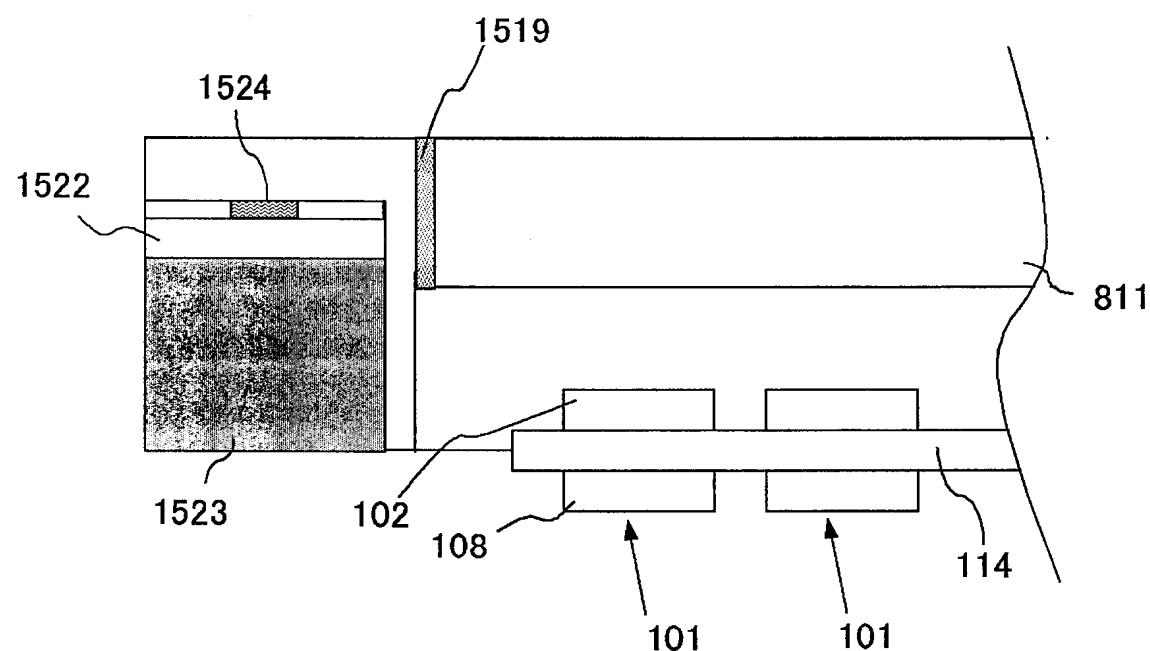
[図3]



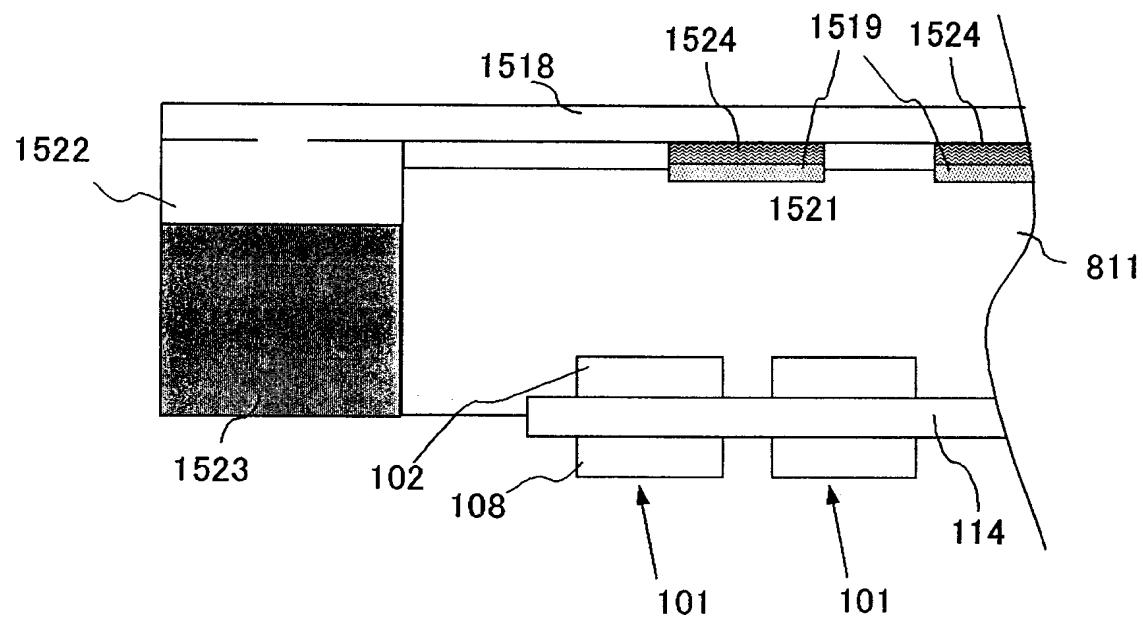
[図4]



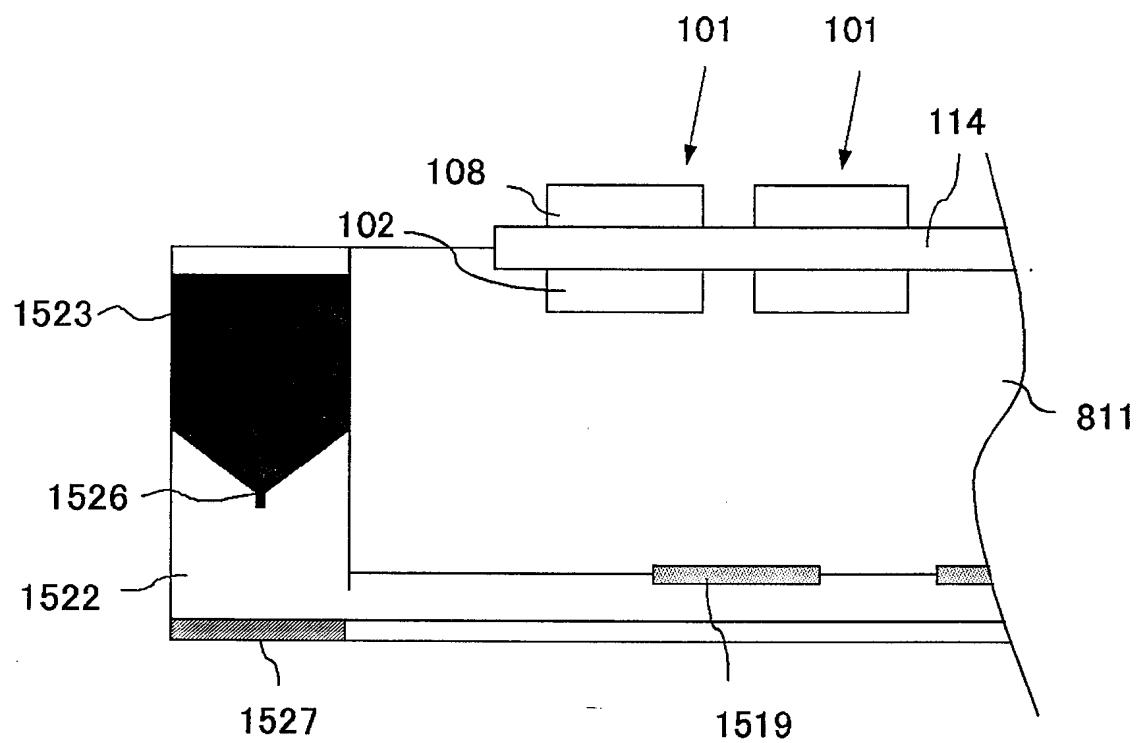
[図5]



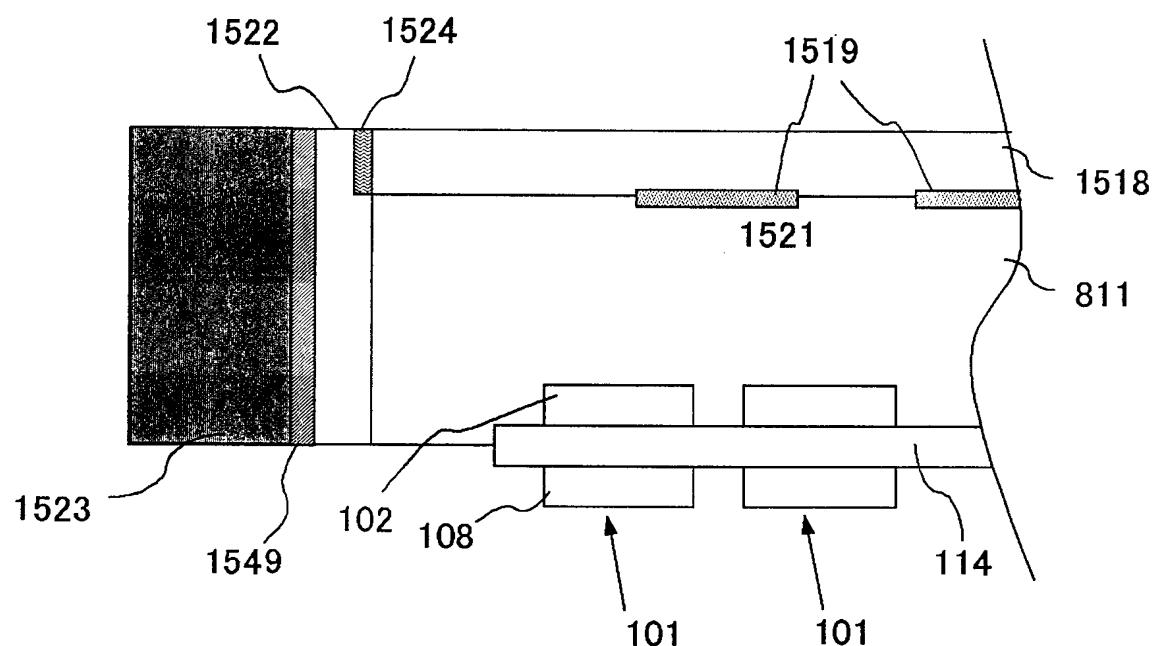
[図6]



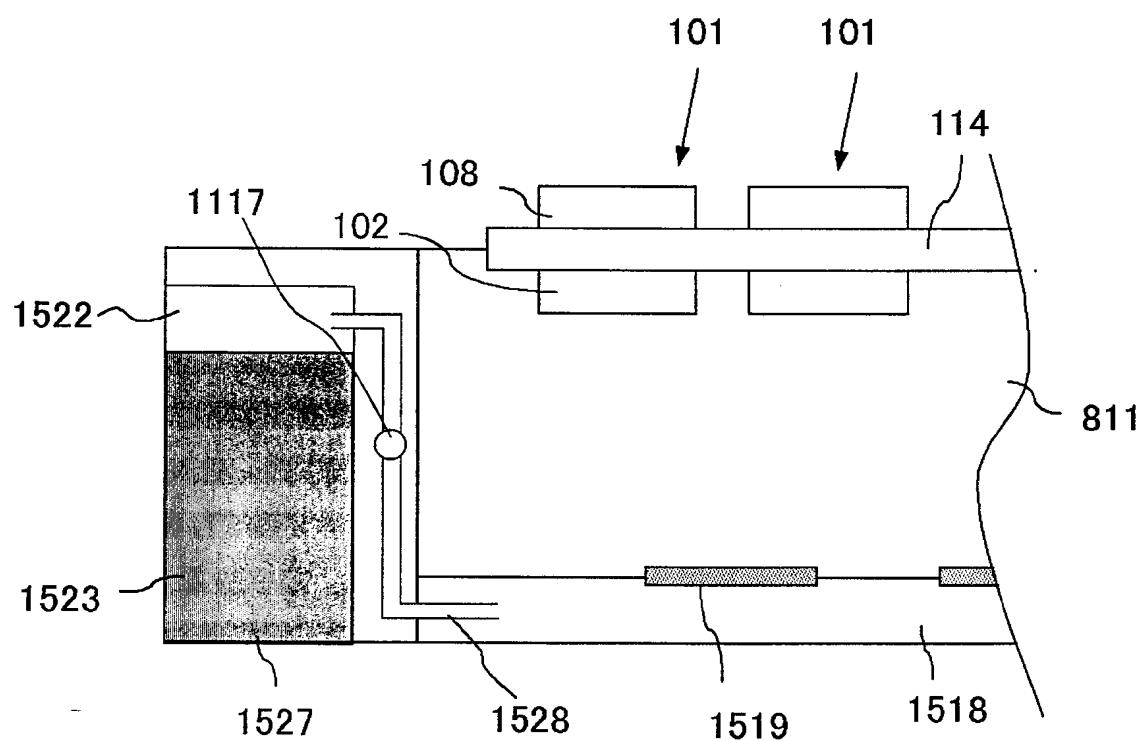
[図7]



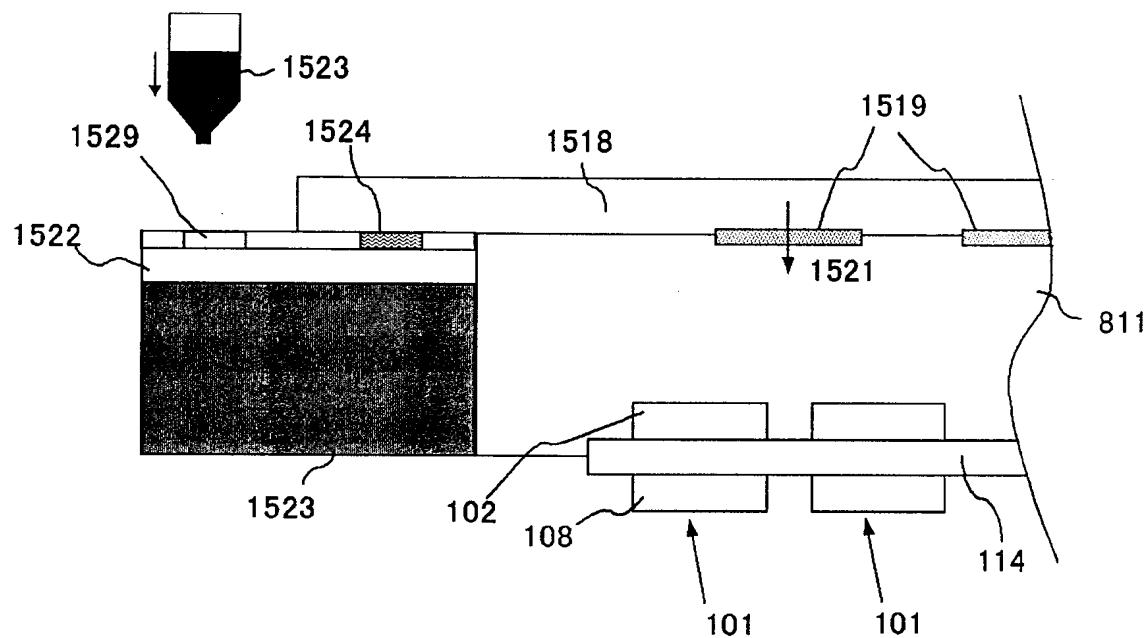
[図8]



[図9]

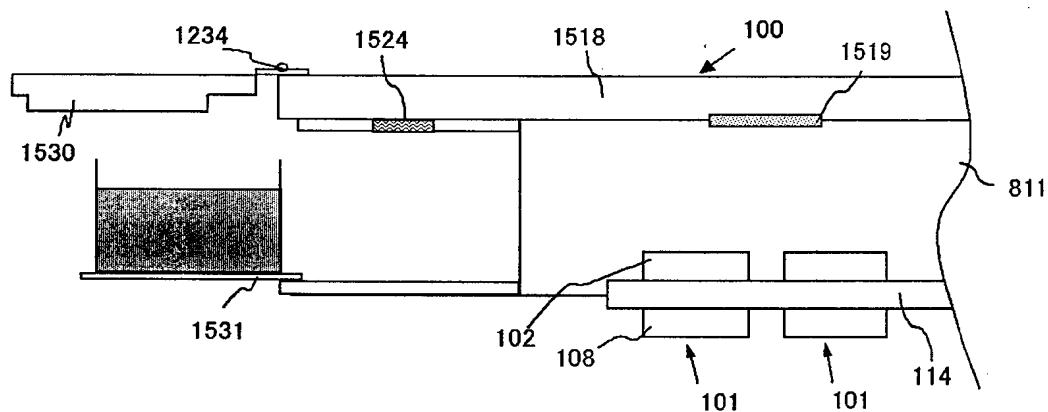


[図10]

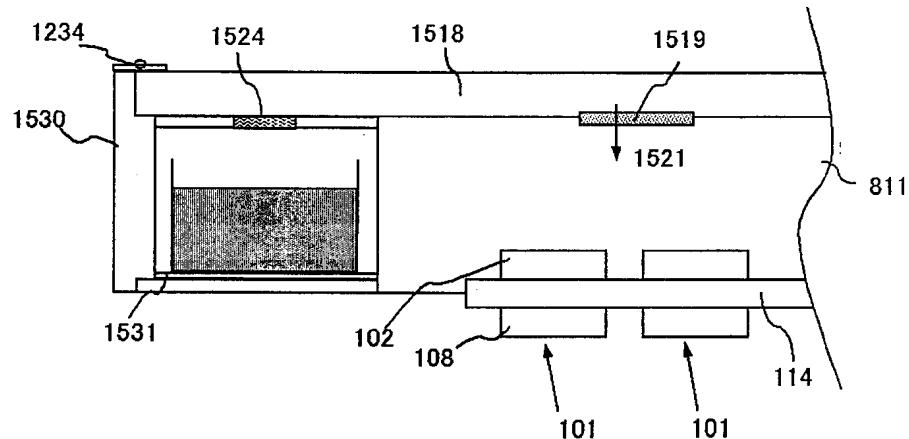


[図11]

(a)

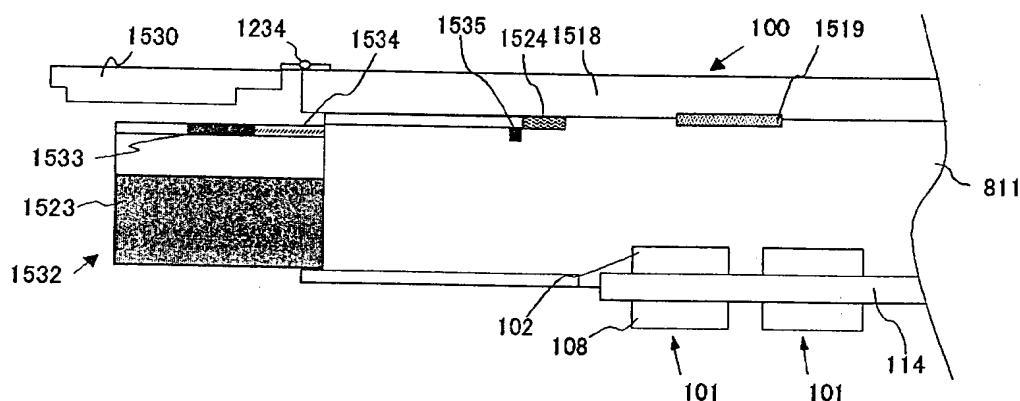


(b)

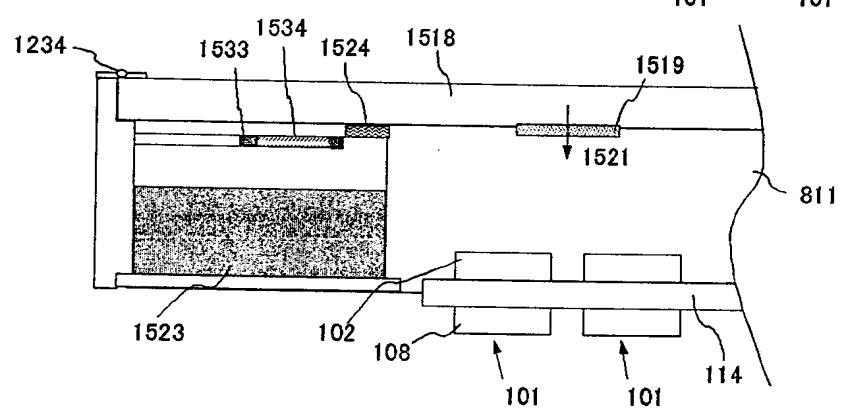


[図12]

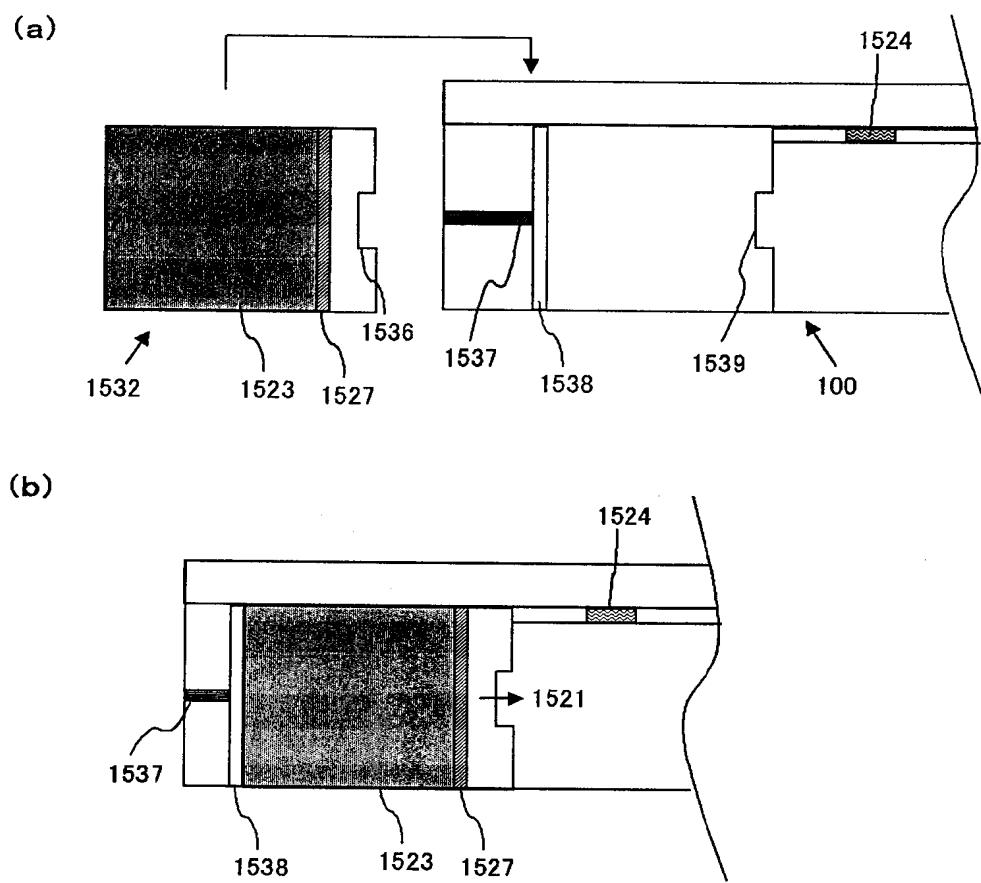
(a)



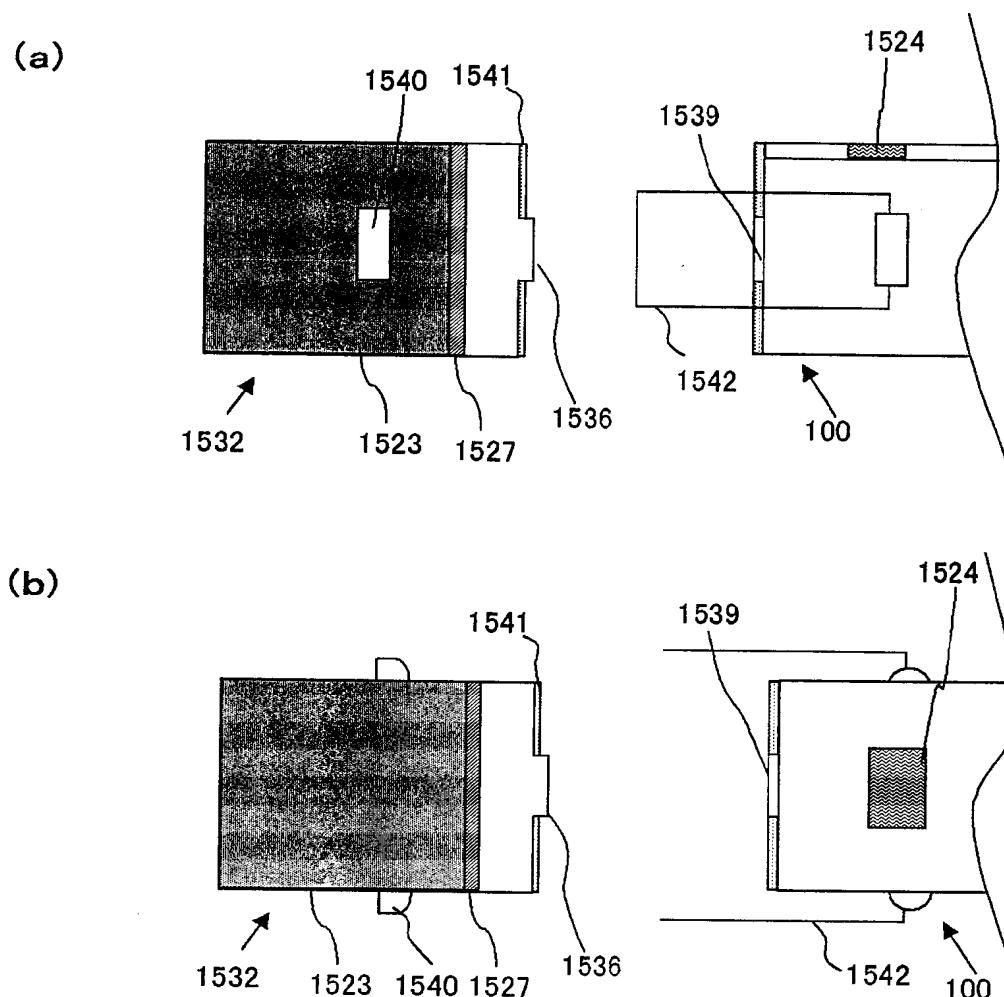
(b)



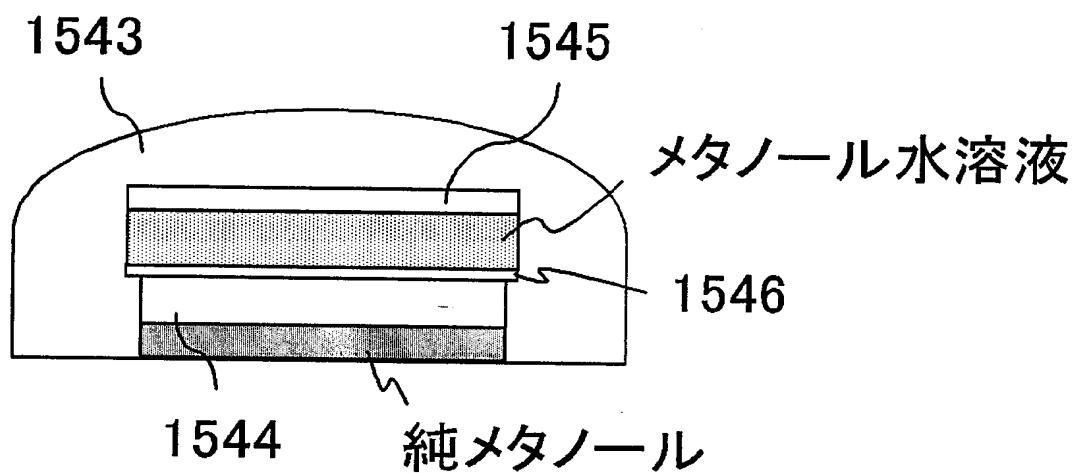
[図13]



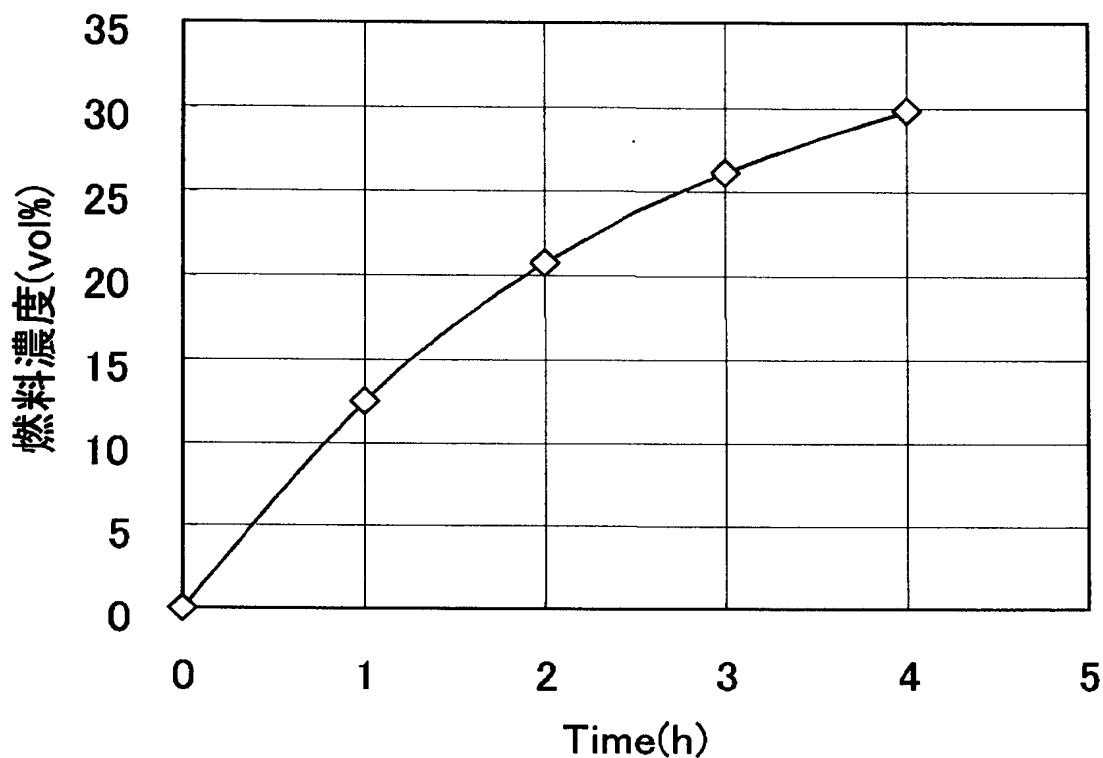
[図14]



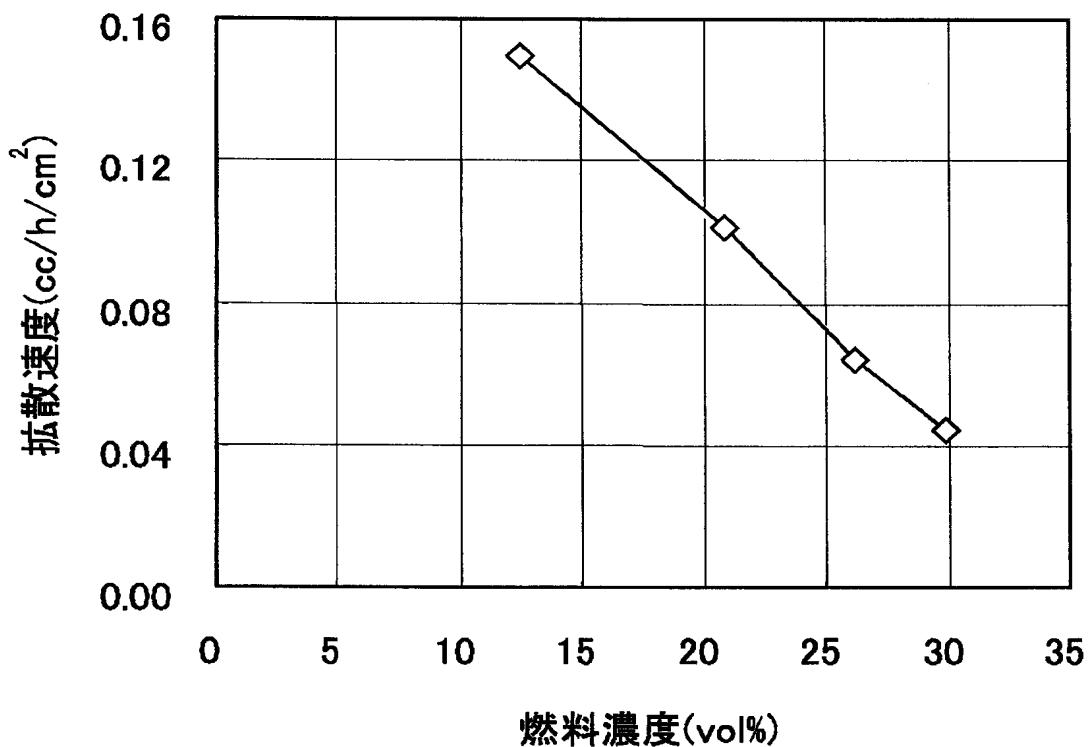
[図15]



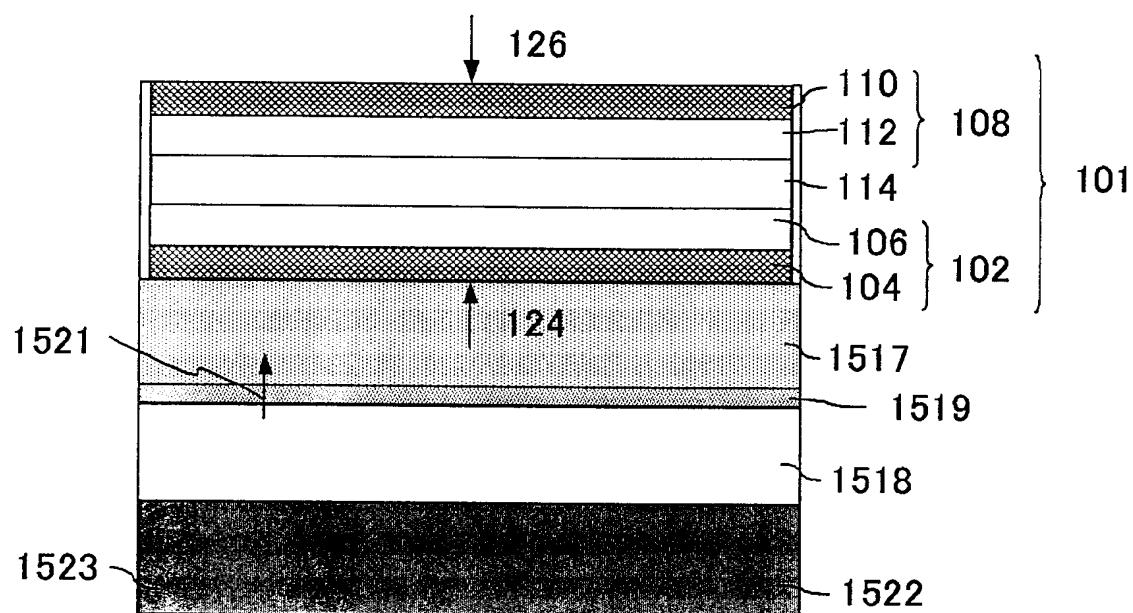
[図16]



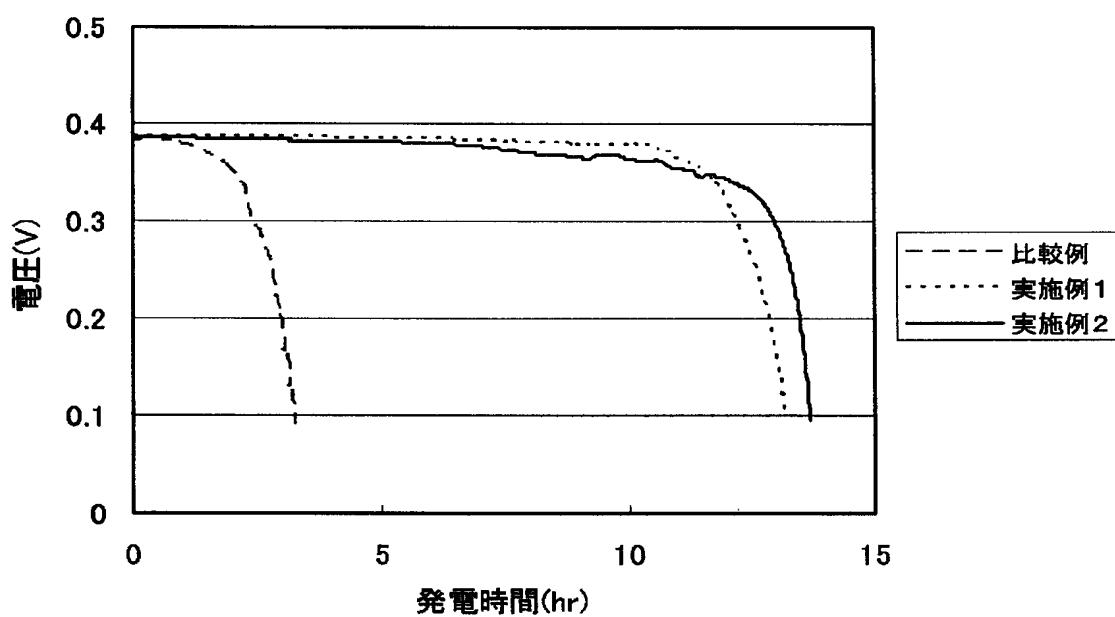
[図17]



[図18]

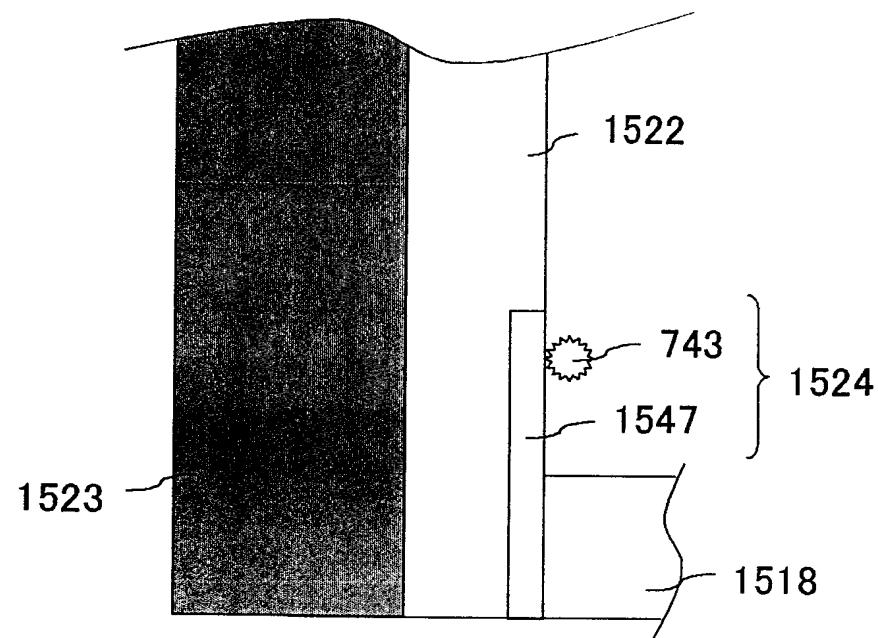


[図19]

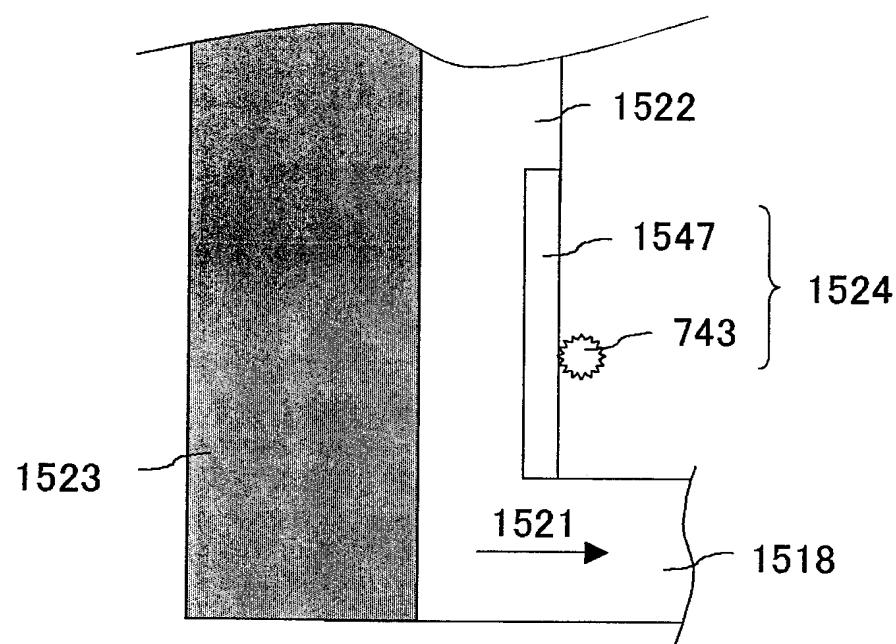


[図20]

(a)

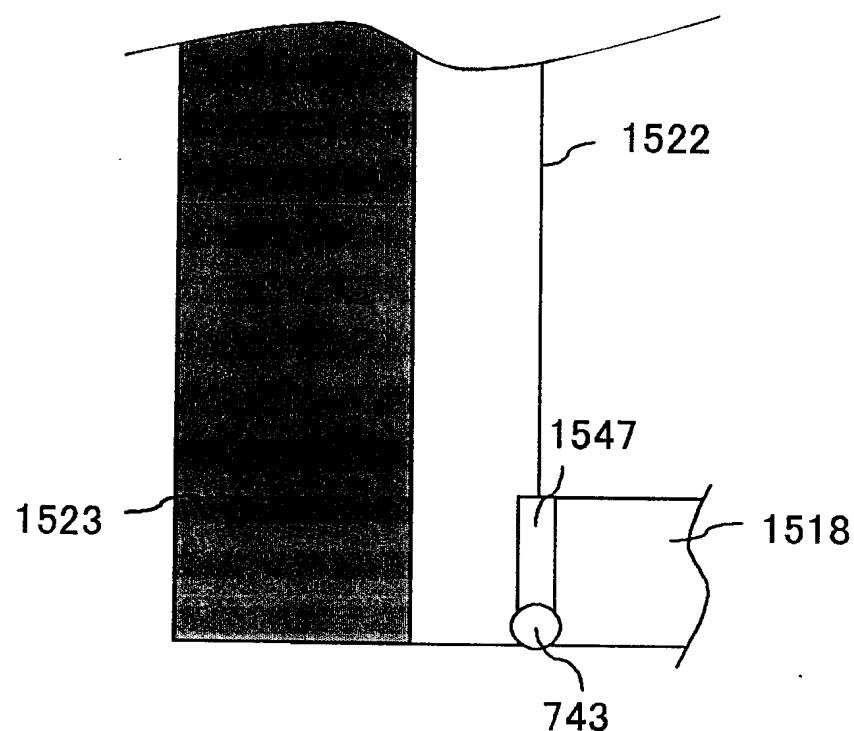


(b)

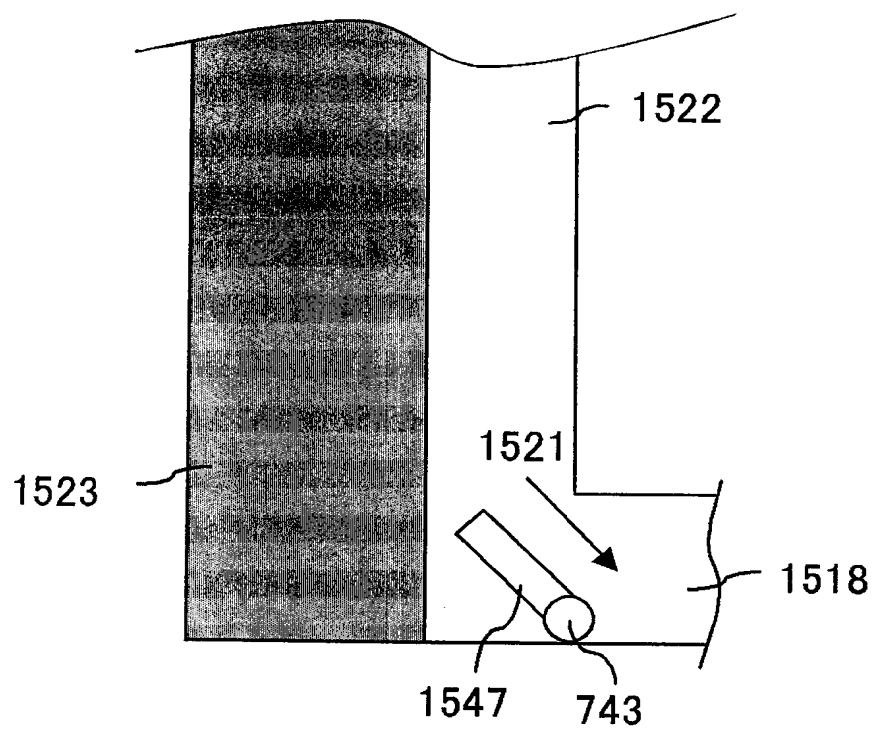


[図21]

(a)

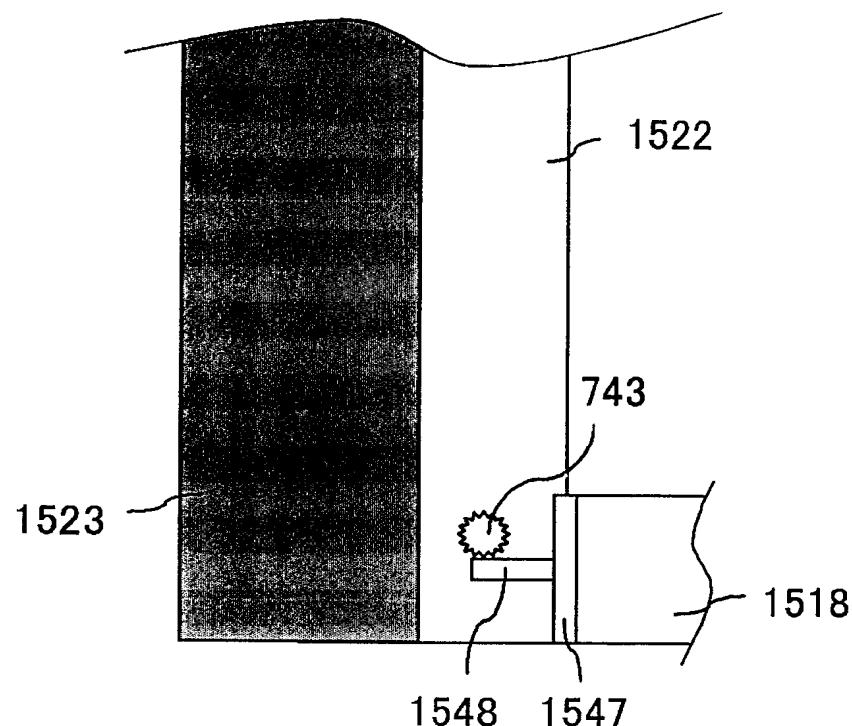


(b)

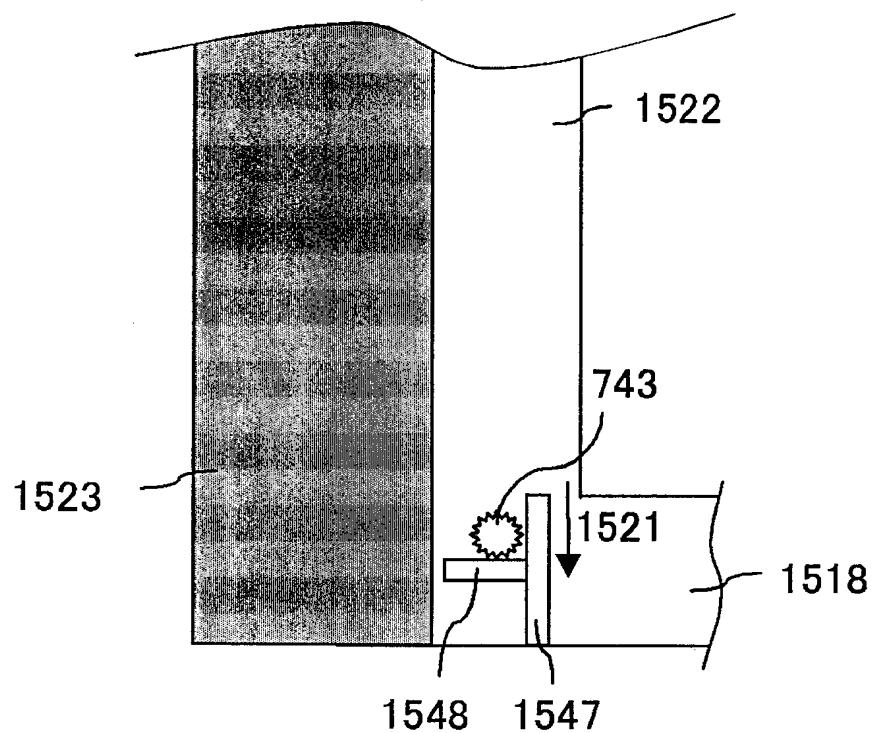


[図22]

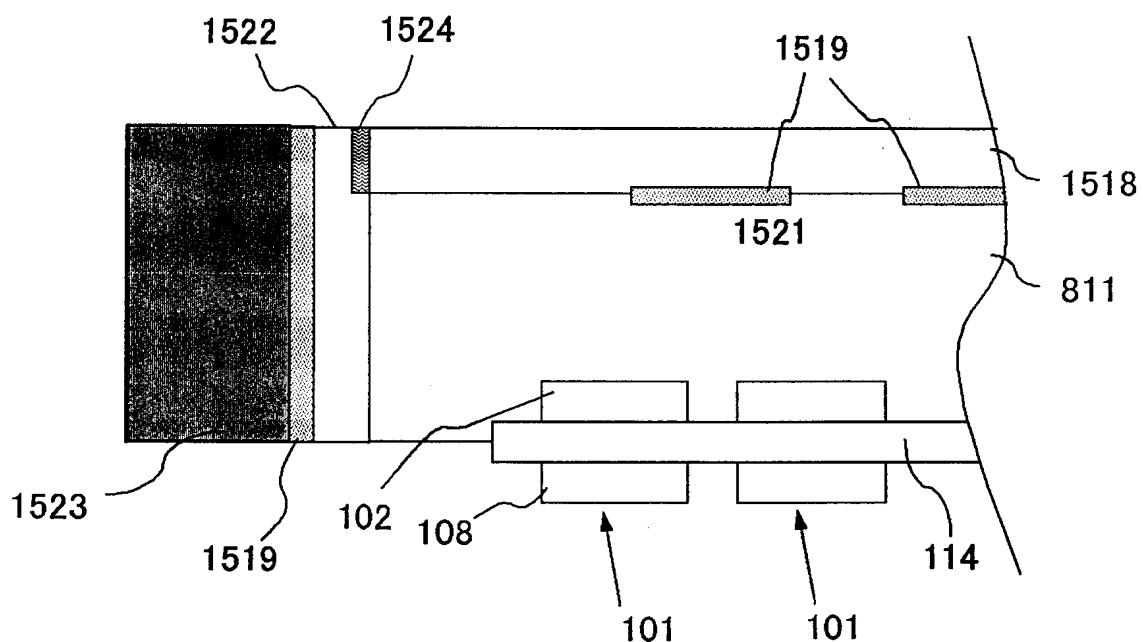
(a)



(b)



[図23]



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/002697

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
**Int.Cl<sup>7</sup> H01M8/04, 8/06**

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

**Int.Cl<sup>7</sup> H01M8/04, 8/06**

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

<b>Jitsuyo Shinan Koho</b>	<b>1922-1996</b>	<b>Jitsuyo Shinan Toroku Koho</b>	<b>1996-2005</b>
<b>Kokai Jitsuyo Shinan Koho</b>	<b>1971-2005</b>	<b>Toroku Jitsuyo Shinan Koho</b>	<b>1994-2005</b>

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 5-343085 A (Honda Motor Co., Ltd.), 24 December, 1993 (24.12.93), Claims (Family: none)	1-14
A	JP 63-237363 A (Hitachi, Ltd.), 03 October, 1988 (03.10.88), Claims (Family: none)	1-14
A	JP 2000-268835 A (Sony Corp.), 29 September, 2000 (29.09.00), Claims (Family: none)	1-14

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>"&amp;" document member of the same patent family</p>
---	---

Date of the actual completion of the international search  
**13 May, 2005 (13.05.05)**

Date of mailing of the international search report  
**31 May, 2005 (31.05.05)**

Name and mailing address of the ISA/  
**Japanese Patent Office**

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2005/002697

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2001-283888 A (Toshiba Corp.), 12 October, 2001 (12.10.01), Claims (Family: none)	1-14
A	JP 4-249865 A (Aisin AW Co., Ltd.), 04 September, 1992 (04.09.92), Claims (Family: none)	1-14

## A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> H01M8/04, 8/06

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> H01M8/04, 8/06

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

## 国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 5-343085 A (本田技研工業株式会社) 1993.12.24, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-14
A	JP 63-237363 A (株式会社日立製作所) 1988.10.03, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-14
A	JP 2000-268835 A (ソニー株式会社) 2000.09.29, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-14
A	JP 2001-283888 A (株式会社東芝) 2001.10.12, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-14

\* C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

## 国際調査を完了した日

13.05.2005

## 国際調査報告の発送日

31.5.2005

## 国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

## 特許庁審査官(権限のある職員)

小川 武

4K 9270

電話番号 03-3581-1101 内線 3435

C (続き) 関連すると認められる文献		関連する 請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
A	JP 4-249865 A (アイシン・エイ・ダブリュ株式会社) 1992.09.04, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-14